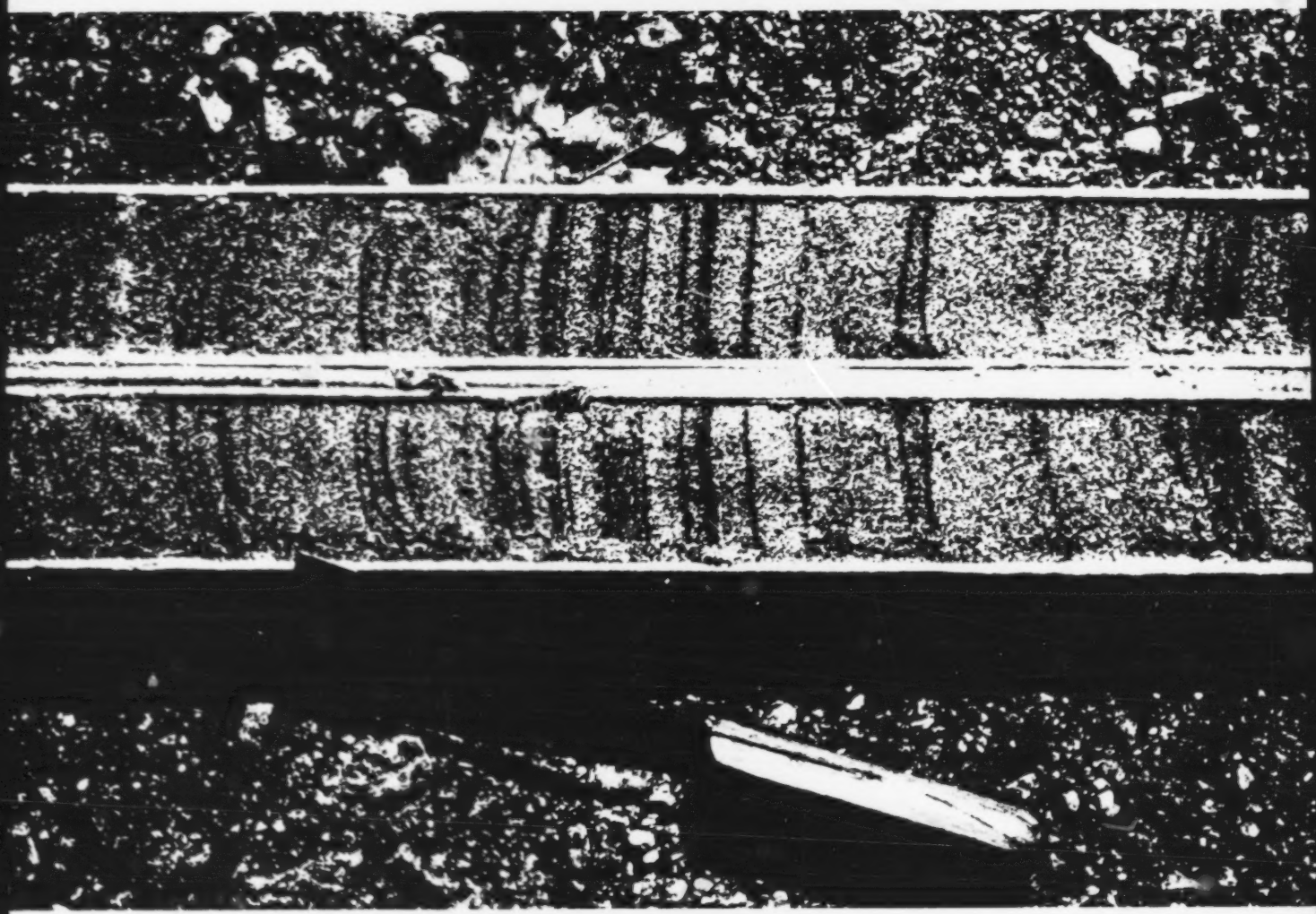
Environment Canada | Environnement Canada

Retention of ^{137}Cs and ^{90}Sr by Mineral Sorbents Surrounding Vitrified Nuclear Waste

K.E. Lyon and R.J. Patterson



NHRI PAPER NO. 27
IWD SCIENTIFIC SERIES NO. 148

NATIONAL HYDROLOGY RESEARCH INSTITUTE
INLAND WATERS DIRECTORATE
OTTAWA, CANADA, 1985

(Disponible en français sur demande)

86-04364/

Cover photograph—

Split core RA5, glass block burial site.

Environment Canada Environnement Canada

Retention of ^{137}Cs and ^{90}Sr by Mineral Sorbents Surrounding Vitrified Nuclear Waste

K.E. Lyon* and R.J. Patterson†

*91 Clovelly Avenue, Toronto, Ontario M6E 2E7

† Environment Canada, National Hydrology Research Institute, River Road Laboratories, Ottawa, Ontario K1A 1C8.
Formerly with the Department of Geological Sciences, Queen's University, Kingston, Ontario K7L 3N6.

NHRI PAPER NO. 27
IWD SCIENTIFIC SERIES NO. 148

NATIONAL HYDROLOGY RESEARCH INSTITUTE
INLAND WATERS DIRECTORATE
OTTAWA, CANADA, 1985

© Minister of Supply and Services Canada 1986

Cat. No. En 36-502/148E

ISBN 0-662-14693-X

Contents

	Page
ABSTRACT	v
RÉSUMÉ	vii
INTRODUCTION	1
PREVIOUS WORK	1
Hydrogeology	1
Radionuclide studies	3
METHODS	4
Ground-water samples	4
Sediment samples and characterization	5
Sample preparation for counting	5
Sample counting and instrument calibration	5
Counting statistics and calculation of radioactivity	6
RESULTS	7
Ground-water levels and chemistry	7
Stratigraphy and sedimentology	8
Activity of whole sediment samples	8
Sorption of ^{137}Cs and ^{90}Sr by mineral fractions	9
Quartz	9
Hornblende	9
Feldspar	9
Micas	13
Activity of sieved sediment fractions	14
DISCUSSION	15
Distribution of retained ^{137}Cs	15
Distribution of retained ^{90}Sr	15
Mineral grain characteristics	16
^{90}Sr retention	16
CONCLUSIONS	18
ACKNOWLEDGMENTS	18
REFERENCES	18

Tables

Page

1. Chemical results for ground waters at piezometer nest RAb 7
2. Sample RA5:353 and RA5:373 and 010:9 counting rates and radioactive contamination of segregated mineral grains 10
3. Sample RA5:353 radioactive contamination of whole sediment and sieved fractions 14
4. Sample RA1:330 measured K_d^{Sr}'s of mineral segregates. 16
5. Measured vs. predicted amounts of sorbed ^{90}Sr for mineral segregates 17

Illustrations

Figure 1. Location of Chalk River Nuclear Laboratories and the study site in the Perch Lake Basin. 2

Figure 2. Location of the glass blocks, piezometers and cores at the study site 3

Figure 3. Vertical distribution of glass blocks. 3

Figure 4. Plan view of ^{137}Cs and ^{90}Sr migration downgradient from the glass blocks in 1963 4

Figure 5. Sediment stratigraphy and distribution of radioactivity in core RA5 8

Abstract

In June 1960, twenty-five 14-cm diameter hemispheres of vitrified nuclear waste (glass blocks) were buried in a shallow sand aquifer in the lower Perch Lake Basin, Chalk River Nuclear Laboratories, Ontario, Canada. Almost all leaching of the glass blocks occurred during the first 18 months of emplacement, and consequently the burial experiment approximated a single-injection source of ^{137}Cs and ^{90}Sr. After about 11 years, most of the ^{90}Sr that was released had been advected and dispersed from the site, whereas the bulk of the ^{137}Cs had travelled no more than 0.3 m from the blocks.

Three piezometers were installed and five cores of sediment were collected at the glass block site in 1978. Mineralogically pure segregates of sand grains were prepared by hand and characterized using binocular, petrographic and scanning electron microscopy, X-ray diffraction, and energy-dispersive X-ray spectroscopy. A technique also was developed to measure very low levels of ^{137}Cs and ^{90}Sr by counting small (10–100 mg) sediment samples directly with a thin window, flow proportional counter.

Results show that sand-sized grains of altered biotite (biotite-vermiculite), biotite, muscovite, hornblende and sericitized feldspar are able to retain ^{137}Cs over a period of 18 years, and that grains of biotite-vermiculite, biotite and hematite-bearing feldspar (largely microcline) can retain low levels of ^{90}Sr over the same period of time. The amounts of ^{137}Cs and ^{90}Sr sorbed by the mineral grains ranged from undetectable levels to approximately 380 and 35 becquerels/gram sediment, respectively. The complete series of mineral segregates can be ranked on a weight basis according to the amounts of retained ^{137}Cs and ^{90}Sr. For ^{137}Cs the ranking is:

biotite-vermiculite >
biotite >
opaque or altered feldspar >
muscovite >
hornblende ≧
translucent feldspar ≧
quartz

and for ^{90}Sr:

biotite-vermiculite ≧
biotite and hematite-bearing feldspar >
all other mineral segregates (quartz, white feldspar, hornblende and muscovite).

Ground-water quality data indicate that none of the retention is the result of the precipitation of strontium or cesium minerals. Results for the mineral segregates, however, suggest that iron oxides play a significant role in the retention of ^{90}Sr, whereas ^{137}Cs appears to be retained principally as an interlayer cation in layer silicates. Results of other studies and calculations incorporating groundwater ^{90}Sr concentration data and experimental K_d^{Sr} values for the minerals indicate that a spectrum of adsorption sites, ranging from readily reversible to very slowly reversible, exists on the sediment for ^{90}Sr.

Résumé

En juin 1960, 25 hémisphères de déchets nucléaires vitrifiés de 14 cm de diamètre (blocs de verre) ont été enfouis dans un aquifère sablonneux et peu profond de la partie inférieure du bassin du lac Perch, aux Laboratoires nucléaires de Chalk River, en Ontario. La lixiviation des blocs s'est presque toute produite durant les 18 premiers mois, ce qui fait que l'expérience équivalait à une injection ponctuelle de ^{137}Cs et de ^{90}Sr. Après environ 11 ans, la majeure partie du ^{90}Sr libéré s'était déplacée horizontalement et dispersée, tandis que presque tout le ^{137}Cs ne s'était déplacé que de 0.3 m des blocs.

En 1978, on a installé trois piézomètres et extrait cinq carottes des sédiments du lieu d'enfouissement. Des grains de sable purs du point de vue minéralogique et séparés par ségrégation ont été préparés à la main puis caractérisés à l'aide de microscopes binoculaires, polarisants et électroniques à balayage, par diffraction des rayons X et par spectroscopie à rayons X dispersive. On a également mis au point une technique pour mesurer de très petites quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr en comptant de petits échantillons de sédiments (de 10 à 100 mg) au moyen d'un compteur proportionnel à fenêtre mince.

Les résultats montrent que des particules de biotite altérée (biotite-vermiculite), de biotite, de muscovite, de hornblende et de feldspath séricitisé, de la grosseur des grains de sable, sont capables de retenir le ^{137}Cs pendant une période de 18 ans et que des particules de biotite-vermiculite, de biotite et de feldspath contenant de l'hématite (microline en grande partie) peuvent retenir de faibles quantités de ^{90}Sr sur une même période. Les quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr adsorbées par les particules minérales variaient de l'indécelable à environ 380 et 35 becquerels par gramme de sédiment, respectivement. Toute la série des minéraux séparés par ségrégation peut être classée pondéralement selon les quantités retenues de ^{137}Cs et de ^{90}Sr. Pour le ^{137}Cs :

biotite-vermiculite >
biotite ≥
feldspath opaque ou altéré >
muscovite >
hornblende ≧
feldspath translucide ≧
quartz

et pour le ^{90}Sr :

biotite-vermiculite ≧
biotite et feldspath contenant de l'hématite >
tous les autres minéraux (quartz, feldspath blanc, hornblende et muscovite).

Les données sur la qualité des eaux souterraines montrent que la rétention n'est aucunement le résultat de la précipitation de minéraux du strontium ou du césium. Les résultats concernant les ségrégations semblent toutefois montrer que les oxydes de fer jouent un rôle important dans la rétention du ^{90}Sr, tandis que le ^{137}Cs paraît surtout retenu comme cation entre les couches de silicates. Les résultats d'autres recherches et les calculs dans lesquels on tient compte des concentrations de ^{90}Sr dans l'eau souterraine et des valeurs expérimentales de K_d^{Sr} dans les minéraux montrent que l'adsorption de ^{90}Sr varie localement dans les sédiments, du rapidement réversible au très lentement réversible.

Retention of ^{137}Cs and ^{90}Sr by Mineral Sorbents Surrounding Vitrified Nuclear Waste

K.E. Lyon and R.J. Patterson

INTRODUCTION

An understanding of the behaviour of radionuclides such as ^{90}Sr and ^{137}Cs in ground-water flow systems is essential for the safe management of nuclear wastes. Most chemical models that may be used to simulate the transport of radionuclides in ground-water flow systems incorporate a distribution coefficient (K_d) to evaluate retardation of the solutes by the aquifer materials (Wang and Anderson, 1982). The use of the distribution coefficient assumes that local equilibrium is readily attained. Field and laboratory evidence, however, indicates that all sorption reactions are not necessarily readily reversible and, particularly, that retention of cations such as ^{90}Sr and ^{137}Cs can occur.

The term "retention" is used in this paper to describe desorption which is relatively slow (i.e., time periods in excess of several days) and which, therefore, leads to non-equilibrium sorption. Retention of cations by mineral grains can occur as a result of chemical processes such as specific adsorption and phyllosilicate interlayer sorption, or as a consequence of physical processes such as diffusion into intergranular fractures.

Both Cs and Sr may be chemically retained by sediments, although the mechanism of retention is different for each element. The retention of Cs occurs as a result of the so-called fixation of trace amounts of Cs as an interlayer cation in 2:1 phyllosilicates such as illite and the micas that have an interplanar spacing of approximately 10 angströms. Although vermiculite typically has an interplanar spacing of 14.4 angströms (Deer *et al.*, 1966), it is also a "Cs-fixer" because the vermiculite interlayer will collapse with K or Cs saturation. Most of the early research, summarized by Tamura (1964), on the sorption of ^{137}Cs by these and other phyllosilicates was conducted in laboratories with reference minerals. Analysis of mineral segregates obtained from contaminated sediments later confirmed the great selectivity of vermiculite and the 10-angström phyllosilicates for ^{137}Cs (Francis and Brinkley, 1976).

The retention of Sr by sediments has been noted to occur as a result of specific adsorption by oxides of Fe, Mn and Al (throughout this paper, the term "oxide" is used in a general sense and is meant to include hydrous and anhydrous oxide, hydroxide, and oxyhydroxide compounds). Tamura and Struxness (1963) and Tamura (1965) reported that alumina and hydrous Fe and Al oxides have a high sorptive selectivity for Sr with respect to Na. Later, Murray (1975) and Kinniburgh *et al.* (1975) demonstrated that hydrous Mn dioxide, hydrous Fe and Al oxides, and amorphous Al hydroxide specifically adsorb trace amounts of Ca and Sr at solution pH values above and below the points of zero charge through a proton-metal exchange reaction.

A long-term experiment carried out at the Chalk River Nuclear Laboratories (C.R.N.L.) (Fig. 1) provided an opportunity to study retention of ^{90}Sr and ^{137}Cs. In June 1960, twenty-five 14-cm diameter hemispheres of vitrified nuclear waste were buried below the water table in the lower Perch Lake Basin (Fig. 1). Subsequent monitoring of ground water and aquifer sediments by staff of Atomic Energy of Canada Limited indicated that most of the radionuclides leached from the hemispheres were released within 18 months after burial (Merritt, 1976). As a result of the rapid leaching, the release can be considered to have approximated a single-injection tracer experiment.

The principal objective of the present study, which was conducted 18 years after burial of the blocks, was to identify the major minerals which retain ^{137}Cs and ^{90}Sr in sediment near the glass blocks. To achieve this objective, it was necessary to develop a radioanalytical technique that would permit the simultaneous determination of low levels (below 380 Bq/g sediment) of ^{137}Cs and ^{90}Sr in small (10 to 20 mg) mineralogically pure samples that could be separated from whole sediments.

PREVIOUS WORK

Hydrogeology

Shallow sediments in the lower Perch Lake Basin are predominantly well-sorted fine sands that were deposited during a high stage of the Ottawa River between about

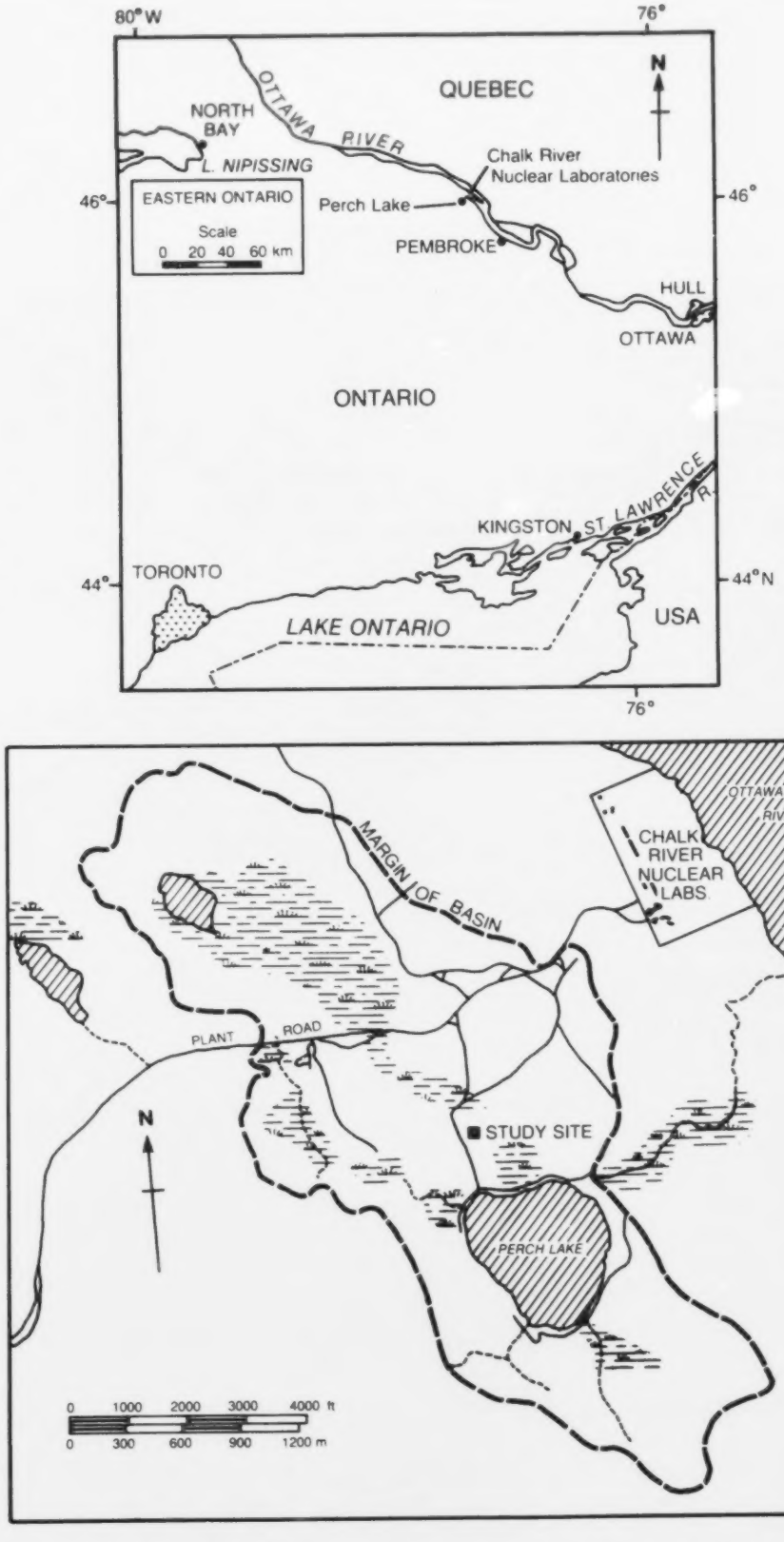


Figure 1. Location of Chalk River Nuclear Laboratories and the study site in the Perch Lake Basin.

10 300 and 9800 years B.P. (Catto *et al.*, 1982). The mineralogy of the sands reflects their origin from underlying Precambrian Grenville Province bedrock, which in the area is composed largely of granitic gneiss and granite. The major minerals in the sediments are quartz and sericitized plagioclase (albite to andesine); the minor minerals are sericitized potassium feldspar, biotite, interstratified biotite-vermiculite, and hornblende (Jackson and Inch, 1980). The cation exchange capacity of the sediments is between 0.3 and 1.75 meq/100 g and the principal exchangeable cation is calcium (Jackson and Inch, 1980; Patterson and Spoel, 1981).

The depth to ground water varies seasonally, but is generally between 1 and 1.5 m. Horizontal hydraulic conductivities for the sands have been estimated by a variety of methods to range between 1×10^{-3} and 5×10^{-3} cm/s (Cherry *et al.*, 1975). Shallow ground waters flow at an average horizontal velocity of approximately 15-20 cm/day in a southeasterly direction (Merritt and Parsons, 1964; Pickens *et al.*, 1980).

Radionuclide Studies

The 25 radioactive glass blocks were buried at the study site in 1960 to investigate the leaching rates of irradiated uranium fuel reprocessing wastes which had been encapsulated in nepheline syenite glass (Merritt and Parsons, 1964). The blocks, each containing approximately 850 GBq of ^{137}Cs, 740 GBq of ^{90}Sr, 70 GBq of ^{144}Ce, and 7 GBq of ^{106}Ru, were placed in a two-dimensional, vertical grid pattern. The grid was oriented approximately perpendicular to the direction of ground-water flow in the depth interval 3.0 to 3.7 m below the ground surface (Figs. 2 and 3). Atomic Energy of Canada Limited staff have studied the leaching of the radioactive glass and the release of ^{137}Cs and ^{90}Sr to the ground-water flow system by regular monitoring of ground-water and aquifer sediments, direct examination of a hemisphere that was retrieved from the site in 1978, laboratory soil column and glass block leaching experiments, and mathematical modelling of the field monitoring results.

Average annual concentrations of ^{90}Sr in ground water 1.8 m downgradient from the blocks decreased from

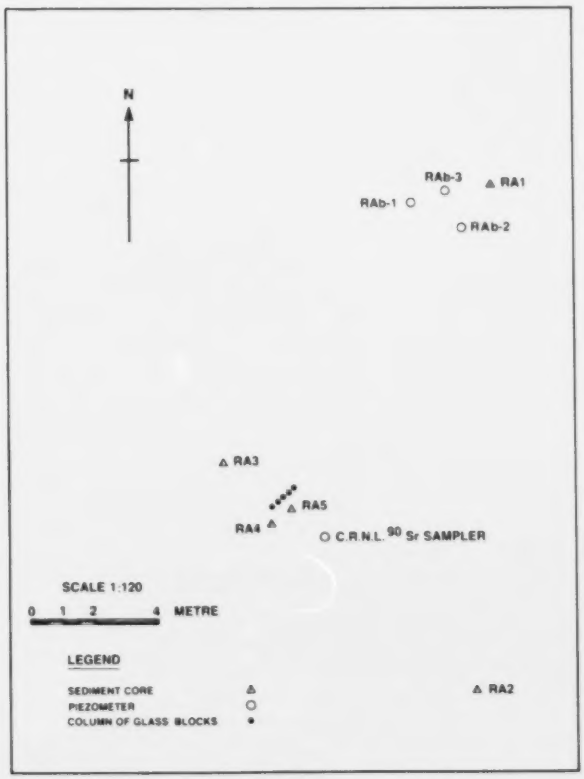


Figure 2. Location of the glass blocks, piezometers and cores at the study site.

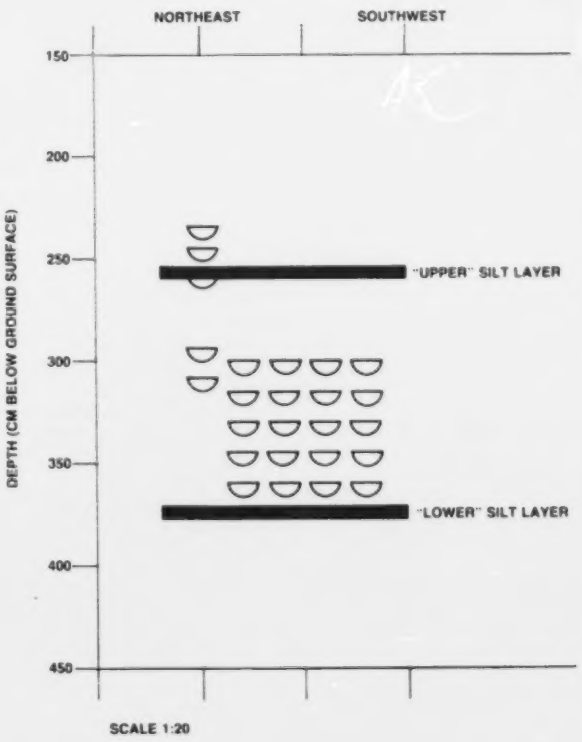


Figure 3. Vertical distribution of glass blocks (after Merritt and Parsons, 1964).

4.8×10^3 Bq/L (1.3×10^{-1} μCi/L) in 1960 to 4.4 Bq/L (1.2×10^{-4} μCi/L) in 1973 and 1974 (Merritt, 1976). Based on this observation, Merritt estimated that 94% (52 MBq) of the ^{90}Sr leached from the glass was released within 18 months after burial. In 1963, and as shown in Figure 4, a ^{90}Sr contaminant plume could be defined to a distance of 11.9 m downgradient from the blocks (Merritt and Parsons, 1964). By 1971, however, because of transport and dispersion by ground-water flow, only very low levels of ^{90}Sr remained (W.F. Merritt, unpublished data).

Walton and Merritt (1979) compared the results of the 1963 soil survey (Fig. 4) with those predicted by a one-dimensional convective dispersive ground-water transport model, assuming a K_d^{Sr} of between 4.6 and 7 mL/g. The predicted results agreed within an order of magnitude with the measured ^{90}Sr soil concentrations, yet some discrepancies were noted. A better predicted fit to the field data was obtained later by Melnyk *et al.* (1984), who assumed that two sorption mechanisms were operating: an equilibrium ion exchange reaction and a disequilibrium oxyhydroxide sorption reaction. The half-life of the oxyhydroxide sorption reaction was estimated to be 2.0 ± 0.2 years.

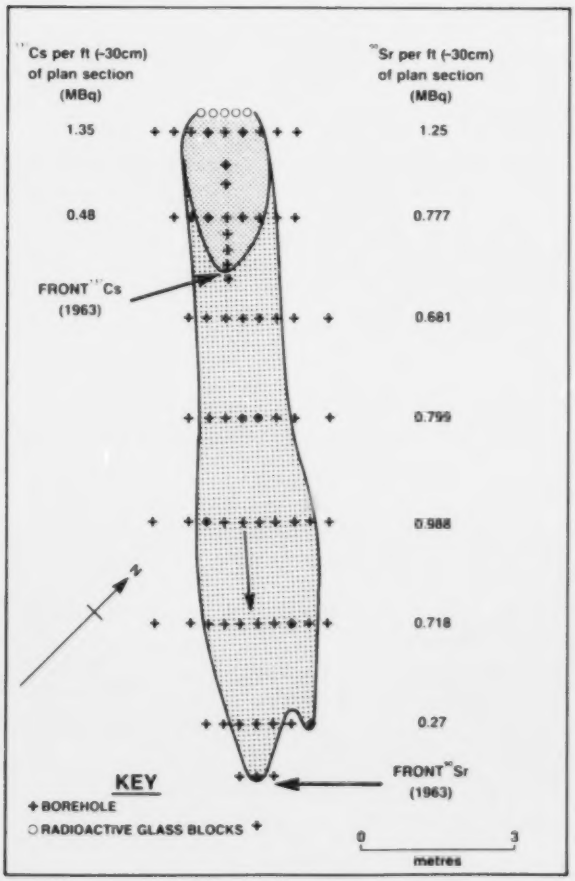


Figure 4. Plan view of ^{137}Cs and ^{90}Sr migration downgradient from the glass blocks in 1963 (after Merritt and Parsons, 1964).

Compared with ^{90}Sr, the transport of ^{137}Cs released at the site has been markedly different (Fig.4). Owing to strong sorption by the sediments, ^{137}Cs has never been detected in ground-water samples at the site (W.F. Merritt, unpub. data). From the results of a sediment survey conducted in 1979, Walton and Merritt (1979) concluded that more than 90% of the total amount of ^{137}Cs leached from the glass had travelled no farther than 0.3 m (similar results were obtained during the 1963 soil survey). However, a low level plume of ^{137}Cs was detected up to 7.5 m downgradient of the blocks. Soil column experiments have subsequently indicated that this transport occurs on fine grain particulate matter (largely between 0.2 and 1.0 μm in diameter) and that formation and release of the particulates is microbiologically mediated (Champ and Merritt, 1981).

METHODS

Ground-Water Samples

Three piezometers constructed from 3.8 cm I.D. ABS plastic pipe were installed and developed 11 m northeast of the vertical grid of glass blocks (Fig. 2). The water table at the site was 1.3 m below ground surface, and the screened intervals of the piezometers were placed at depths between 1.8 and 5.7 m.

Water level measurements were taken in August and September 1978 and in February 1979, and the piezometer waters were sampled in August 1978 with a portable peristaltic pump. Field E_H and pH electrode measurements were taken in an airtight, in-line flow cell after several piezometer volumes of water had been removed. Ground-water conductivity, temperature and dissolved oxygen were also determined in the field at the time of sampling.

Samples for total inorganic carbon were retained in the field in disposable syringes and then analyzed with an Oceanography International Total Carbon System. Chloride was measured with an ion-selective electrode and alkalinity levels were determined by acid titration. Sulphate was measured turbidimetrically by precipitation as $BaSO_4$.

Ground-water samples for the rest of the analyses were filtered through 0.45-μm membranes in the laboratory under N_2 (gas) pressure. Those samples to be used for major

cations were acidified with concentrated HCl prior to analysis by atomic absorption spectrophotometry. Concentrations of trace cations (Sr, Ba, Rb, Cs) were measured in non-acidified samples by a thermal neutron activation and gamma-ray spectroscopy technique (Merritt, 1971).

Sediment Samples and Characterization

Five sediment cores spanning the depth interval from 1.3 to 4.2 m were recovered from the second glass block site by procedures that have been described by Patterson *et al.* (1978). The cores, retained in 5.08-cm diameter thin-walled aluminum tubing, were numbered sequentially and prefixed with "RA", the designation for the closest C.R.N.L. piezometer nest.

Core RA1 was sectioned into 30-cm lengths and later used by Patterson and Spoel (1981) to determine K_d^{Sr} values. After gravity drainage of water, all other cores were sectioned longitudinally with a carbide-tipped saw blade. Sediment samples were then collected at selected intervals for freeze-drying and subsequent preparation for counting.

Each sediment sample was designated according to the core and depth of the top of the selected interval below ground level. For example, sample RA5:353 was obtained from the depth interval beginning at 353-cm depth below ground in core RA5. One additional sediment sample from the C.R.N.L. 1971 sediment survey was used in the study. This sample is designated 010:9 and was obtained from a depth of 272-276 cm at a location 0.3 m downgradient from the blocks.

Freeze-dried samples selected for grain size analysis were sieved for 10 min in a Ro-Tap shaker. The results of weighing the sieved fractions were plotted as cumulative curves on logarithmic probability paper, and moment measures were estimated graphically according to the methods of Folk and Ward (1957). Silt and clay laminae were sieved to a grain size of less than 0.0625 mm prior to sample preparation for counting.

The mineralogy of grains was determined under a reflecting binocular microscope on the basis of physical characteristics such as cleavage, fracture, colour and lustre. Samples of quartz, feldspar, biotite, biotite-vermiculite, muscovite and hornblende were segregated from the 0.42- to 0.50-mm grain size fraction with the use of fine jeweller's tweezers or a sharp needle.

Further characterization of the grains was carried out using thin-sections, scanning electron microscopy-energy dispersive X-ray spectrometry (SEM-EDS), and X-ray diffraction analysis. The SEM used at C.R.N.L. was a Cambridge Stereoscan, which was coupled with a Tracor Northern EDS unit. The SEM samples were not pretreated except by freeze-drying and carbon-coating. A semi-quantitative log energy intensity scale was used in distinguishing elements heavier than neon in major, minor and trace amounts. The X-ray diffraction analysis was undertaken at Queen's University with a Picker diffractometer.

Sample Preparation for Counting

Three types of sediments were prepared for counting: whole sediments, grain size fractions and mineral segregates. Whole samples representing stratigraphic intervals and sieved silt and clay samples were taken directly by spatula from thoroughly shaken sample bottles and distributed as evenly as possible and to a thickness of less than 1 mm over individual pre-weighed, 3.0-cm diameter stainless steel counting disks. Sieved grain size fractions were taken from mechanically split fractions obtained with a Soiltest sediment splitter. The grains in the mineral segregates were distributed evenly in the centre of the disks. Following a second weighing, all samples were attached to the disk with flexible collodion.

The Gaussian standard deviation associated with sample weight measurements was calculated and used in all subsequent determinations of weight-normalized counting rates. Sandy sediment weights were generally between 40 and 100 mg, and silt and clay weights usually ranged from 20 to 35 mg. Weights of the mineral segregate samples generally ranged between 11 and 14 mg.

Sample Counting and Instrument Calibration

Sediment samples were counted in a Sharp low beta flow-proportional counter which uses P-10 gas (90% Ar and 10% CH_4). The counter contains two detectors with 100 $\mu g/cm^2$ windows and anti-coincidence shielding is provided by two connected guard counters. One source of low level extraneous radiation at C.R.N.L. is atmospheric ^{41}Ar, formed from ^{40}Ar exposed to the neutron flux in research nuclear reactors. Sediment samples were counted only when levels of atmospheric ^{41}Ar were judged to be insignificant or low as indicated by a NaI scintillation detector. When low levels of ^{41}Ar were indicated, the detector was surrounded by a continuous flow of N_2 gas to minimize the effect of ^{41}Ar on counting rates.

Samples were generally counted for 2 to 4 h, but always until at least 120 counts were collected. This length of time represented a compromise between obtaining adequate and consistent counting statistics, processing as many samples as possible, and minimizing the inconvenience of manual control of the counting periods.

Counting results are reported as gross, instrument background, corrected, and net counting rates (counts per minute, cpm). The corrected sample counting rate was calculated by subtracting the instrument background counting rate (determined with empty counting disks) from the gross counting rate. All corrected counting rates were then normalized to a sample weight of 100 mg, with the assumption that the detector counting efficiencies for natural terrestrial radionuclides within the sediment matrix are independent of sample weight. This assumption is considered to be valid for the low levels that were present (W.F. Merritt, personal communication). A net sample counting rate (cpm/100 mg) attributable to the presence of ^{137}Cs and ^{90}Sr was then calculated by subtracting the corrected counting rate of an uncontaminated, or blank, sediment sample. Natural terrestrial radionuclides which are present within sediments and which were represented by corrected blank counting rates include ^{40}K, ^{87}Rb, and members of the ^{238}U and ^{232}Th decay series.

To discriminate between the contribution of ^{137}Cs and ^{90}Sr to net counting rates, selected samples were counted with and without an aluminum absorber placed over the sample disk. The absorber, or filter, had a thickness corresponding to 225 mg/cm^2 which absorbs all beta particles with energies less than 0.63 MeV (Friedlander *et al.*, 1964). Thus, the filter completely blocked the ^{90}Sr, ^{87}Rb and 0.51 MeV ^{137}Cs beta particles. Attenuated beta contributions to the filtered sample counting rate were possible from the decay of the ^{90}Sr daughter product, ^{90}Y, and the minor ^{137}Cs beta particle (maximum energy of 1.18 MeV), as well as from the decay of ^{40}K, the ^{238}U and ^{232}Th series of radionuclides, and ^{41}Ar. Trace gamma contributions to the filtered counting rate were possible from the decay of ^{137m}Ba, ^{40}K, the ^{238}Y and ^{232}Th decay series of radionuclides, and ^{41}Ar.

The ^{137}Cs and ^{90}Sr calibration standards were prepared from samples of uncontaminated fine sand that were spiked with known activities (53.7 ± 0.5 and 63.7 ± 0.6 Bq/g, respectively) of the two radionuclides. The counting efficiency of the radiation detectors was assumed to depend upon sample weight, and several subsplits of spiked and blank samples weighing between 10 and 100 mg were prepared. Net unfiltered and filtered counting rates of spiked samples were then used in constructing separate ^{137}Cs and ^{90}Sr calibration curves. Unfiltered detector efficiencies for both radionuclides were approximately 20% to 30%, depending upon sample weight. The filtered detector efficiencies for ^{137}Cs and ^{90}Sr were approximately 6% and 0.2% to 0.3%, respectively.

Counting Statistics and Calculation of Radioactivity

Counting and disintegration rates are listed with standard deviations attributable to counting statistics and the uncertainty in sample weights. Standard deviations of the gross counting rates were calculated as the square root of the total number of counts divided by the counting time, in accordance with the assumption of a Poisson distribution. Standard deviations of the instrument background counting rates, however, were estimated by the mean Gaussian sample standard deviation because of the occasional presence of minor levels of atmospheric ^{41}Ar.

Low counting rates were recorded for many of the samples, and it was necessary to establish critical levels for detection (L_c) of both corrected and net counting rates. Approximate values of the critical levels for detection were derived from the sample variances of counting rates, as described by Lyon (1981). A value of 0.10 was selected as the maximum acceptable probability of making an error of the first kind (deciding a substance is present when it is not).

Because it was not feasible to standardize counting times, it was not possible to calculate detection limits for counting rates as rigorously defined by radiochemists (for example, see Currie, 1968). Accordingly, an alternative procedure was developed that relies upon the calculation of the probability that a corrected or net counting rate (x) with sample standard deviation (S_x) exceeds the critical level for detection of the rate. The calculation was based on the expression

$$Z = \frac{L_c - x}{S_x}$$

where Z is the standard normal deviate. The cumulative normal frequency distribution greater than Z was then obtained from Snedecor and Cochran (1967) and is reported as the probability of detection.

For any sediment sample with statistically significant net unfiltered and filtered counting rates, the activity of ^{137}Cs and ^{90}Sr present in the sample can be calculated by solving two equations derived from several known relationships. The equations are described by Lyon (1981) and include terms related to detector counting efficiencies, unfiltered and filtered net counting rates of the samples, and the ratios of the unfiltered to filtered net counting rates of the calibration standards. Concentrations of both radionuclides are expressed as disintegrations per minute per 100 mg (dpm/100 mg) of dry sediment.

The approximate level of detection for both radionuclides was 10 dpm/100 mg (2 Bq/g). By way of comparison, an activity of 10 dpm/100 mg is equivalent to 5.2×10^{-13} g ^{137}Cs per gram dry sediment and 3.2×10^{-13} g ^{90}Sr per gram dry sediment.

The single greatest constraint on the simultaneous determination of ^{137}Cs and ^{90}Sr in sediments using the low beta flow proportional counter is the very low counting rates obtained when the aluminum absorber is in place. These low rates decreased the precision of the reported rates as well as the filtered ^{90}Sr calibration curve. For many of the samples, the probability was less than 90% that corrected and net filtered counting rates exceeded their critical levels for detection. If these counting rates were assumed to be zero, however, unwarranted bias possibly would have been given to the unfiltered counting rates. In this study, the criterion was adopted that any corrected counting rate which exceeded its critical level for detection (probability of detection greater than 50%) was used in further calculation of net counting rates. Counting rates that did not meet this criterion were reported as not detected and were assumed to be zero. Similarly, any net filtered counting rate with a probability of detection greater than 0.5 was used in further calculation of ^{137}Cs and ^{90}Sr activities.

Samples with undetected net filtered counting rates but with detected net unfiltered counting rates were assumed to contain only ^{137}Cs. However, ^{90}Sr could have been present in these samples, and a method was developed to indicate this possibility (Lyon, 1981). The calculated probability that ^{90}Sr activity exceeded zero dpm/100 mg is reported in the tables of data and in every case was less than 0.5.

Two whole sediment samples (RA5:353 and RA5:373), each weighing approximately 18 g, were analyzed with a Ge(Li) gamma spectrometer and then were mechanically split and analyzed with the low beta counter. Levels of ^{137}Cs determined with the low beta counter were greater than levels determined with the Ge(Li) spectrometer by approximately 20% to 55%. This apparent difference may be the result of systematic error in the calibration curves or of a mineralogic bias introduced by whole sediment sample preparation.

RESULTS

Ground-Water Levels and Chemistry

During August-September 1978 and February 1979, vertical hydraulic gradients were variable over the depth interval of 1.8 to 5.7 m at the site. The maximum measured gradient between the screened intervals of the three piezometers was 0.0106. This corresponds to an upward vertical

Table 1. Chemical Results for Ground Waters at Piezometer Nest RAb

Parameter*	Piezometer			
	RAb-1	RAb-2		RAb-3
Sample interval (cm below ground surface)	180–220	330–370		530–570
Date sampled	1978-08-01	1978-08-01	1978-08-24	1978-08-02
Temperature (°C)	–	–	8.6	8.0
Conductivity (μS/cm)	62	–	54	82
pH	5.4	–	5.5	6.4
E_H (V)	<0.3	0.44	0.55	0.27
H_2S (gas)	Present	Absent	Absent	Present
Dissolved oxygen†	0.2	1.2	–	0.1
Fe	0.3	0.1	<0.1	2.0
Mn	0.06	0.07	<0.05	0.06
Ca	6.5	5.5	7.5	12.5
Mg	1.6	1.8	2.2	3.6
Sr	3.5×10^{-2}	3.3×10^{-2}	3.7×10^{-2}	5.3×10^{-2}
Ba	1.6×10^{-3}	1.5×10^{-3}	1.8×10^{-3}	1.2×10^{-3}
Na	2.6	2.2	2.5	2.7
K	0.6	0.7	0.7	1.7
Rb	4.6×10^{-4}	1.8×10^{-3}	2.0×10^{-3}	1.4×10^{-3}
Cs	$<1 \times 10^{-4}$	5×10^{-6}	$<1 \times 10^{-6}$	$<1 \times 10^{-6}$
T.I.C.‡	11.0	11.3	11.5	12.6
Alkalinity (meq/L)	–	–	0.11	–
SO_4	–	–	18	–
Cl	7.8	5.6	–	21.6

* All units are in milligrams per litre unless noted, with the exception of pH.
† Measurement may include dissolved oxygen which diffused through the Tygon sampling tube.
‡ Total inorganic carbon.

velocity (assuming a sediment porosity of 0.38) of approximately 6 cm/day (Lyon, 1981), or only about one-third the value of average horizontal ground-water velocities at the site.

Analytical results for ground-water samples obtained at the site are given in Table 1. The chemistry of these waters is typical of shallow ground waters throughout the Perch Lake Basin.

Water sampled from the middle piezometer (RAb-2) had an ionic strength of 10^{-3} and calculated values of solubility indices indicated undersaturation with respect to calcite, strontianite and celestite. On the basis of this undersaturation and SEM-EDS studies which showed no evidence of mineral deposition on sediment grains, retention of ^{90}Sr cannot be accounted for by precipitation of solid phases. Similarly, Cs losses cannot be ascribed to mineral formation.

Concentrations of dissolved iron in water from the middle piezometer were less than or equal to 0.1 mg/L, and probably reflect the controlling influence of an iron oxide solid phase. No authigenic iron sulphide was observed by SEM-EDS analysis of site sediments.

Stratigraphy and Sedimentology

Soil at the site belongs to the orthic humo-ferric podzol subgroup (Canadian Soil Survey Classification) and the Bf horizon extends to a maximum depth of 1.5 m.

Using the terminology of Reineck and Singh (1973), sedimentary bedding in the cored interval 1.3 to 4.2 m below ground surface can be described as coarsely interlayered. The bedding consists of lamina sets (ranging in thickness to 50 cm or more) of well-sorted, fine sand separated by thin (1 mm) laminae of silt and clay. Figure 5 illustrates the stratigraphy observed in core RA5.

Some core sections displayed very distinct, even laminations of sand. These laminations, generally less than 1 cm thick, are composed of finer grained, mafic (biotite and hornblende)-rich layers and coarser grained, felsic layers and possibly represent a littoral environment. Other core sections displayed less distinct, thicker (to 5 cm) laminations of sand in which variations in the silt content often served to define the laminations. The sizes of cross-laminations of sand that were observed are similar to those produced by migrating small current or wave ripples.

A massive, medium grain feldspar-rich layer of 2- to 11-cm thickness was found in cores RA3, RA4 and RA5. It was the only layer in the cores that contained pebbles.

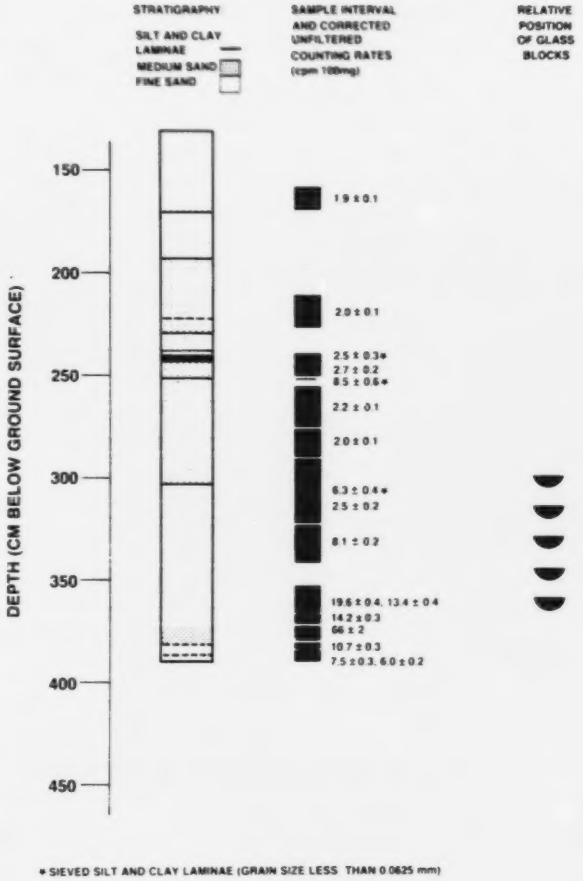


Figure 5. Sediment stratigraphy and distribution of radioactivity in core RA5.

Activity of Whole Sediment Samples

Whole sediment samples from the cores RA2, RA4 and RA5 were counted to determine the stratigraphic distribution of ^{137}Cs and ^{90}Sr contamination in the vicinity of the blocks. Samples from the 330- to 360-cm depth interval in core RA3, which was taken upgradient from the blocks, were used to establish background counting rates. The corrected unfiltered counting rate over 2 h for these background samples ranged between 1.3 ± 0.1 and 2.0 ± 0.2 cpm/100 mg. These rates were due solely to naturally occurring terrestrial radionuclides.

Counting rate results for sediments from the other cores indicate that contamination (26 cpm/100 mg) at RA2 was restricted to a 1-cm thick clay lamina at the 2.6-m depth. At RA4, low levels of contamination (up to 26 cpm/

100 mg) were indicated for silt laminae in the depth interval 3.2 to 4.1 m. The highest levels of contamination were encountered in core RA5 (Fig. 5) located only 40 cm downgradient from the blocks. Contaminated sand samples were found at depths between 2.9 m and the bottom of the core, and the most active sample (66 cpm/100 mg) came from the medium grain felsic sand layer. Silt laminae in the depth interval 2.5 to 3.0 m below ground level show higher levels of contamination than adjacent fine sands. Since the highest levels of contamination were measured in RA5, subsequent detailed investigations were carried out on sediments from this core.

Sorption of ^{137}Cs and ^{90}Sr by Mineral Fractions

The distribution of sorbed ^{137}Cs and ^{90}Sr on the basis of mineralogy was determined for two contaminated sediment samples: RA5:353 (353- to 367-cm depth interval) and RA5:373 (373- to 380-cm depth interval). Segregates of quartz, several feldspars, biotite, biotite-vermiculite, muscovite and hornblende were prepared for counting from the 0.42- to 0.50-mm size fraction of each sediment sample. Blank counting rates attributable to natural radionuclides and ranging from not detected to 7 cpm/100 mg were obtained from uncontaminated mineral grains segregated from the same grain size fraction of RA3:346. The highest blank unfiltered counting rates (greater than 5 cpm/100 mg) were obtained with K-rich feldspar, muscovite and biotite and probably reflect the presence of ^{40}K. With alteration to vermiculite, biotite loses interlayer K, and this loss is reflected in the lower unfiltered counting rate (2.6 cpm/100 mg) of biotite-vermiculite.

The counting rates and levels of ^{137}Cs and ^{90}Sr sorbed by all the prepared mineral segregates are listed in Table 2.

Quartz

Quartz grains were identified under the reflecting microscope on the basis of colour, vitreous lustre and glacial surface textures. Most grains were angular to subangular with high sphericity (Powers, 1953). Some grains appeared to contain trace to minor surface patches of a red-orange iron oxide coating. In rare instances, an iron oxide-coated fracture plane through a grain could be observed. Petrographic analysis of a thin section prepared from a segregate of quartz grains showed that most grains were monocrystalline with undulatory extinction. The X-ray diffraction analyses indicated that the samples contained only trace or minor quantities of feldspar.

The SEM analysis showed that the quartz grains display well-developed glacial surface textures such as conchoidal breakage patterns (Krinsley and Donahue, 1968; Krinsley and Doornkamp, 1973). None of the grains that was examined showed well-developed chemical dissolution or precipitation features. The quartz grains generally had abundant adhering particles, and the variable composition of this material as determined by X-ray intensity spectra suggested that most of the particles were glacial rock flour. Some iron-rich material was also detected on the grains and is likely iron oxide.

The counting rates and levels of radioactive contamination for the four quartz segregates are listed in Table 2. The net unfiltered counting rates that were obtained for these segregates were the lowest of all the mineral segregates that were prepared, with the single exception of one feldspar segregate. The highest net unfiltered counting rate (5.4 cpm/100 mg) and the only probable occurrence of ^{90}Sr (15 ± 10 dpm/100 mg) were associated with sample 373-Q3. The surfaces of all grains in this segregate displayed trace to minor amounts of a red-orange coating, which presumably was iron oxide.

Hornblende

Hornblende grains were segregated on the basis of their characteristic cleavage (producing surface angles of 56° and 124°), vitreous lustre and black colour. Trace amounts of brown silt and clay were visible on most hornblende grains observed under the reflecting miscroscope. In the grain size fraction examined, hornblende comprised less than 1% of the grain population.

Only one contaminated hornblende segregate was prepared, and it contained approximately 100 dpm ^{137}Cs/100 mg (Table 2). Evans (1954) has reported previously that hornblende segregates obtained from lower Perch Lake Basin sediments retain Cs. The mechanism of retention has yet to be determined, but may be related to incongruent mineral dissolution.

Feldspar

Characteristic cleavage, vitreous to pearly lustre, colour, and uneven to conchoidal fracture served as the main criteria in identifying feldspar. The segregated grains were translucent to opaque, sub-angular to subrounded and high in sphericity (Powers, 1953). In most cases, grains were segregated according to colour into two major groups: pink plus orange; and white. There is some feldspar in the sediments that resembles quartz but it was not possible to segregate it effectively using the reflecting microscope. About 20% of the segregated feldspar grains showed trace surface patches of iron oxide or silt-clay.

Table 2. Sample RA5:353 and RA5:373 and 010:9 (from 1971 Survey) Counting Rates and Radioactive Contamination of Segregated Mineral Grains

Sample number*	Type of count†	Counting rate (counts ÷ min)	Weight (mg)	Corrected counting rate (cpm/100 mg)	Probability of detection‡	Net counting rate (cpm/100 mg)	Probability of detection‡	^{137}Cs (dpm/100 mg)§	^{90}Sr (dpm/100 mg)§
353-Q1	UF	750 ÷ 788	12.66	2.13 ± 0.35	1.00	N.D.	0.12	N.D.	N.D.
	F	99 ÷ 121	12.66	N.D.	0.00	N.D.	0.00		
373-Q1	UF	1118 ÷ 946	10.92	4.57 ± 0.41	1.00	2.79 ± 0.82	0.97	9.4 ± 2.7	N.D.
	F	167 ÷ 161	10.92	N.D.	0.49	N.D.	0.49	(P = 1.00)	(P = 0.33)
373-Q2	UF	168 ÷ 126	14.32	4.54 ± 0.74	1.00	2.76 ± 1.02	0.83	–	–
373-Q3	UF	230 ÷ 131	15.03	7.14 ± 0.77	1.00	5.36 ± 1.05	1.00	3 ± 12	15 ± 10
	F	148 ÷ 136	15.03	0.95 ± 0.61	0.70	0.95 ± 0.61	0.70	(P = 0.55)	(P = 0.83)
373-H1	UF	640 ÷ 139	13.54	29.0 ± 1.4	1.00	29.0 ± 1.4	1.00	99.9 ± 5.5	N.D.
	F	133 ÷ 145	13.54	N.D.	0.07	N.D.	0.00	(P = 1.00)	(P = 0.36)
353-F4 (translucent pink)	UF	365 ÷ 144	12.82	14.4 ± 1.1	1.00	9.40 ± 1.12	1.00	N.D.	29.7 ± 3.6
	F	149 ÷ 120	12.82	2.31 ± 0.81	0.97	2.31 ± 0.81	0.97	(P = 0.32)	(P = 1.00)
353-F6 (translucent pink)	UF	340 ÷ 156	11.75	12.7 ± 1.0	1.00	7.69 ± 1.10	1.00	26.0 ± 3.8	N.D.
	F	668 ÷ 647	11.75	N.D.	0.43	N.D.	0.43	(P = 1.00)	(P = 0.12)
353-K1 (Opaque orange)	UF	662 ÷ 169	9.77	33.1 ± 1.6	1.00	27.8 ± 1.8	1.00	58.3 ± 9.1	32.3 ± 6.3
	F	1409 ÷ 1206	9.77	2.28 ± 0.38	1.00	2.28 ± 0.38	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
373-K1 (Opaque orange)	UF	1258 ÷ 134	10.14	85.9 ± 2.8	1.00	80.6± 2.9	1.00	217 ± 20	48 ± 15
	F	219 ÷ 164	10.14	3.84 ± 0.91	1.00	3.84 ± 0.91	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
353-F2 (translucent white)	UF	268 ÷ 143	12.76	9.34 ± 0.93	1.00	7.51 ± 1.17	1.00	25.7 ± 4.1	N.D.
	F	1550 ÷ 1564	12.76	N D.	0.06	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.47)
353-F5 (translucent white)	UF	214 ÷ 123	12.28	8.61 ± 1.00	1.00	6.78 ± 1.23	1.00	23.1 ± 4.2	N.D.
	F	127 ÷ 128	12.28	N D.	0.30	N.D.	0.05	(P = 1.00)	(P = 0.47)

* Q – quartz; H – hornblende; F, P, K – feldspar; B – biotite; V – biotite-vermiculite; M – muscovite.
† UF – unfiltered; F – filtered.
‡ Probability of counting rate exceeding critical level for detection.
§ P – Probability of activity exceeding zero.
N.D. – Not detected.

Table 2. Continued

Sample number	Type of count	Counting rate (counts ÷ min)	Weight (mg)	Corrected counting rate (cpm/100 mg)	Probability of detection	Net counting rate (cpm/100 mg)	Probability of detection	^{137}Cs (dpm/100 mg)	^{90}Sr (dpm/100 mg)
353-F7 (translucent white)	UF	508 ÷ 145	12.90	21.9 ± 1.2	1.00	20.0 ± 1.4	1.00	68.8 ± 5.3	N.D.
	F	149 ÷ 159	12.90	N.D.	0.10	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.41)
373-P1 (translucent white)	UF	627 ÷ 150	12.88	27.2 ± 1.3	1.00	25.3 ± 1.5	1.00	86.9 ± 5.7	N.D.
	F	133 ÷ 140	12.88	N.D.	0.14	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.39)
373-F3 (translucent white)	UF	564 ÷ 166	13.13	20.7 ± 1.1	1.00	18.9 ± 1.3	1.00	64.7 ± 4.9	N.D.
	F	636 ÷ 652	13.13	N.D.	0.07	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.42)
010:9-F1 (translucent white)	UF	226 ÷ 158	12.08	6.19 ± 0.82	1.00	4.37 ± 1.09	1.00	14.8 ± 3.7	N.D.
	F	123 ÷ 127	12.08	N D.	0.21	N.D.	0.03	(P = 1.00)	(P = 0.48)
353-F3 (opaque white)	UF	693 ÷ 184	12.14	25.4 ± 1.2	1.00	23.6 ± 1.4	1.00	80.1 ± 5.3	N.D.
	F	857 ÷ 794	12.14	1.10 ± 0.34	0.83	N.D.	0.09	(P = 1.00)	(P = 0.40)
373-P2 (opaque white)	UF	1917 ÷ 151	18.38	65.4 ± 1.6	1.00	63.5 ± 1.8	1.00	215 ± 19	14 ± 15
	F	233 ÷ 160	18.38	2.44 ± 0.52	1.00	1.58 ± 0.90	0.61	(P = 1.00)	(P = 0.83)
353-B1	UF	2046 ÷ 127	13.40	115.1 ± 2.9	1.00	107.8 ± 2.9	1.00	354 ± 19	16 ± 12
	F	169 ÷ 136	13.40	2.21 ± 0.73	0.98	2.21 ± 0.73	0.98	(P = 1.00)	(P = 0.91)
373-B1	UF	5271 ÷ 85	15.76	389.1 ± 6.2	1.00	381.9 ± 6.2	1.00	1291 ± 42	51 ± 14
	F	331 ÷ 157	15.76	7.36 ± 0.75	1.00	7.36 ± 0.75	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
353-V1	UF	6215 ÷ 173	11.56	304.9 ± 5.1	1.00	302.3 ± 5.1	1.00	799 ± 40	208 ± 26
	F	392 ÷ 131	11.56	17.7 ± 1.3	1.00	16.0 ± 1.6	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
373-V1	UF	5228 ÷ 45	17.64	655 ± 10	1.00	652 ± 10	1.00	2266 ± 72	72 ± 23
	F	455 ÷ 138	17.64	13.33 ± 0.89	1.00	11.7 ± 1.2	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
373-M1	UF	588 ÷ 137	7.00	51.6 ± 2.7	1.00	44.8 ± 2.8	1.00	144.4 ± 9.8	N.D.
	F	179 ÷ 157	7.00	2.8 ± 1.3	0.87	N.D.	0.30	(P = 1.00)	(P = 0.31)

Pink and Orange Feldspars

The common feature of grains in the pink and orange group was the presence of small, bright red hematite inclusions which are always visible in thin section. The combined amount of pink and orange feldspar comprised less than 10% of the total segregated feldspar. About 50% of the opaque pink and orange grains were actually rock fragments which contained trace to minor amounts of mafic minerals.

Thin-section analysis of sample 353-F4 (Table 2) showed translucent pink grains to be largely microcline. One quarter of the grains were polysynthetically twinned in the manner of plagioclase (chiefly oligoclase, with some albite). Thin-section analysis also showed opaque grains to be extensively altered. Identification of the altered grains was very difficult, although at least some were sodic plagioclase.

The degree of translucency or opacity of pink and orange feldspar grains reflected the presence of sericite and very fine grain, white to orange-brown alteration products that could not be positively identified. The degree of sericitization paralleled the development of the other alteration products. In moderately altered samples, the very fine alteration products were localized along, but not restricted to, cleavage planes and microfractures. It is thought that the orange-brown product may be either minute inclusions of exsolved hematite or iron oxide alteration products of hematite.

White Feldspars

The term "white feldspar" refers to grains that ranged in translucency from being opaque to almost transparent and colourless. As in the pink and orange feldspars, the degree of translucency or opacity depended upon the amount of sericite and fine-grained, unidentified alteration products. In total, less than 10% of the feldspar grains were opaque white.

Thin-section analysis of the white feldspars indicated that oligoclase was the predominant mineral, and determination of optic axial angle and sign suggested a composition of about An_{20}. Some microcline was present in all thin sections (although it decreased in abundance in samples exhibiting a greater degree of alteration), as was albite. Alteration products obscured most optical properties of the opaque grains. The plagioclase was not zoned and some anti-perthite was observed. A few grains in every thin section contained inclusions of hematite, although none of the grains exhibited the characteristic staining of pink and orange feldspar. Epidote was identified in some grains, indicating that saussuritization had occurred.

Available evidence indicates that the alteration products in all feldspars observed in thin section were produced by metamorphic or hydrothermal processes and not by recent weathering. The evidence includes the presence of saussurite and sericite and indistinct boundaries separating altered and unaltered feldspar. Distinct boundaries are believed to be characteristic of alteration by weathering processes (Rodgers and Holland, 1979; Walker *et al.*, 1978).

SEM-EDS Analysis of Feldspars

The SEM-EDS analysis of the surfaces of the orange and pink feldspar grains showed a wide variation in elemental composition suggesting albite, perthite and microcline. Out of a total of five white feldspar grains that were similarly examined, four grains appeared to contain Ca in greater amounts than Na and K. This observation was not consistent with the results of the thin-section analysis of white feldspar segregates, and it is not known whether the apparent predominance of Ca at the mineral surface is the result of X-ray source geometries or of true chemical alteration. The feldspar matrix spectra were not useful in identifying alteration products, but all grain surfaces contained Fe.

Several feldspar grains that had been segregated from core RA3 samples and from other cored sediments in the lower Perch Lake Basin were observed by SEM-EDS, but only one grain surface was noted to be extensively etched. None of the grain surfaces of feldspars obtained from core RA3 appeared to be significantly smoothed by precipitation coats.

All of the feldspar surfaces that were examined by SEM were littered with adhering particles, and maximum coverage of about 5% of the total surface area occurred in sample 010:9-F1. Grain matrix spectra interfered with the particle spectra, and so it was difficult to determine the particle compositions. Given the wide variation in compositions that was observed, the simplest interpretation is that most particles were glacial rock flour. Many particles, however, had a composition very similar to that of the matrix to which they were adhering, suggesting a surface splintering origin.

Levels of ^{137}Cs and ^{90}Sr in Feldspars

The levels of ^{137}Cs and ^{90}Sr sorbed by pink and orange feldspar segregates ranged from below detection limits to 217 ± 20 dpm/100 mg and 48 ± 15 dpm/100 mg, respectively (Table 2). The only apparent difference between opaque orange samples from the two core intervals was the presence of a greater percentage of red-orange grains

in sample 373-K1 (30% vs. 10% in sample 353-K1). The radioisotope ^{90}Sr was possibly detected in only one white feldspar segregate (373-P2) but all eight white feldspar segregates contained ^{137}Cs (23 ± 4 to 215 ± 19 dpm/100 mg).

The association of ^{90}Sr with pink and orange feldspars may be due to primary grain mineralogy or, more probably, the presence of oxides. The grains in the translucent pink segregates were predominantly microcline with minor plagioclase, whereas the white segregates that did not contain detectable amounts of ^{90}Sr were mostly plagioclase with minor microcline. A greater abundance, or degree of alteration, of included hematite in the coloured samples suggests that much of the sorption may be due to iron oxides.

Regardless of colour, the opaque and more highly altered feldspar segregates contained greater levels of sorbed ^{137}Cs than the translucent segregates (Table 2). The significance of the very fine-grained unidentified alteration product in ^{137}Cs sorption could not be determined, but its role could be considerable if it contained sericite and zeolite. On the basis of structure, sericite would be expected to retain trace levels of ^{137}Cs as an interlayer cation. Some zeolites have a high sorptive capacity for Cs, and are strongly selective for Cs compared with Sr (Berak, 1963). Regardless of its origin, plagioclase usually contains some sericite (Moorehouse, 1959), and so it is expected that plagioclase in most sediments will sorb and retain some Cs.

The retention of Cs by feldspar grains in the lower Perch Lake Basin was first noted by Evans (1954), who reported that significant levels of ^{134}Cs and ^{137}Cs were not readily desorbed by H_2O_2, $CaCl_2$ or Na_2CO_3 solutions.

Micas

Biotite grains were segregated on the basis of their black colour and characteristic platy shape. Most grain surfaces had a dull appearance in comparison with freshly cleaved (001) planes, which had a vitreous lustre. The dull lustre is undoubtedly produced by chemical alteration of the grain surfaces. Biotite-vermiculite (X-ray diffraction analysis confirmed vermiculite) was segregated on the basis of surface alteration colour. Biotite-vermiculite surfaces ranged from dark green to bronze, and single grains often displayed the full range of colour.

Muscovite grains separated from the glass block site sediments were transparent to translucent, depending upon the presence of minute inclusions or the development of alteration products. Sediment sample RA5:353 did not contain sufficient muscovite in the 0.42- to 0.50-mm grain size fraction to permit preparation of a muscovite segregate.

With one exception, 373-V1, only a few grains in all mica segregates contained visible trace patches of iron oxide. Sample 373-V1 exhibited an iron oxide coating on about 5% of its total surface area.

Unlike almost all other mineral segregates that were prepared for counting, a difference was observed between biotite and biotite-vermiculite grains that were separated from the two RA5 sampling intervals. Grains obtained from RA5:373 were altered to a greater degree, as shown by a greater abundance of dark green biotite and by a greater intensity of bronze colouration in the biotite-vermiculite. Also, biotite and biotite-vermiculite grains in this sample were present in approximately equal abundance, whereas biotite was much more abundant than biotite-vermiculite in sample RA5:353. The greater degree of alteration shown in RA5:373 samples is considered to be the result of a primary sediment sorting mechanism. Patterson (1979) has noted that active weathering of biotite in the lower Perch Lake Basin appears to be restricted to the upper 1 to 2 m of the section. Moreover, fine grains of biotite in the two core RA5 intervals were not altered more than the coarse grains, as would be expected if active weathering had been responsible.

SEM-EDS Analysis of Micas

The X-ray spectra for the biotite and biotite-vermiculite surfaces indicated that with alteration grain surfaces become relatively depleted in Cl and K and enriched in Ca, Mg, Fe, Ti and Cr, consistent with a transformation from biotite to vermiculite. With few exceptions, the X-ray spectra of particles on biotite and biotite-vermiculite grain surfaces were very similar to the corresponding matrix spectra. Photomicrographs indicated that these particles originated from the grain surfaces by some physical process of splintering. Also, the photomicrographs showed that the grains have begun to open along cleavage planes. These openings, as well as the presence of particles derived from the mineral surface, have the potential to increase the effective surface area and sorptive capacity of biotite and biotite-vermiculite grains beyond what would be expected from considerations of grain size and shape alone.

Muscovite grains did not have visible surface coatings of Fe oxide, yet matrix spectra indicated that a minor amount of Fe was present. At a magnification of x 5000, the muscovite grain edges appear to be partially opened, but not to the extent observed in the biotite and biotite-vermiculite.

Levels of ^{137}Cs and ^{90}Sr in Micas

Levels of ^{137}Cs sorbed by biotite-vermiculite are approximately twice the levels of ^{137}Cs sorbed by biotite in each stratigraphic interval (Table 2). For sediment sample RA5:373, the biotite segregate sorbed more ^{137}Cs (1291 dpm/100 mg) on a weight basis than the muscovite segregate (144 dpm/100 mg). This result is consistent with the observations that the alteration of biotite, including opening of grain edges, has proceeded to a greater extent than muscovite. Sawhney (1970) has shown that the sorptive properties of 2:1 phyllosilicates are determined to a significant extent by the areas of "frayed" mineral edges (edge-expanded interlayers which form so-called wedge sorption zones). The significance of alteration was further demonstrated by the results for sample 373-V1, which contained the most visibly altered grains and had the highest level of ^{137}Cs (2266 ± 72 dpm/100 mg).

Both biotite and muscovite may weather to vermiculite with the loss of interlayer K and deposition of Al hydroxide interlayers. Although it is generally thought that large mica grains initially weather from grain edges towards grain centres, Jackson *et al.* (1973) have noted that cation diffusion and deposition of hydrous Fe and Al oxides along cleavage planes are facilitated by numerous grain microfractures and pores. Expanded vermiculite interlayers also can readily accommodate hydrated alkaline earth cations such as Sr.

Biotite-vermiculite grains from the glass block site appear to have a greater ^{90}Sr retention capacity than biotite grains (Table 2). A significant correlation between the degree of biotite weathering or alteration to vermiculite and the amount of sorbed ^{90}Sr is evident only for the segregates obtained from sediment sample RA5:353 (16 ± 12 dpm/100 mg for biotite vs. 208 ± 26 dpm/100 mg for biotite-vermiculite). Oxides may be responsible for some of the differences between the biotite and biotite-vermiculite segregates. However, segregate 373-V1, which contained the most altered and iron-rich grains, did not contain the highest level of sorbed ^{90}Sr. These observations suggest that other mechanisms of retention may be important in the micas. Specifically, it is possible that nonuniform interlayer sorption of ^{137}Cs has caused nonuniform collapse of interlayers and isolation of regions containing alkaline earth interlayer cations such as Sr. This mechanism of isolation has been described by Douglas (1977).

Activity of Sieved Sediment Fractions

Sample RA5:353 was sieved into several phi interval size fractions that were split mechanically and counted. A stratigraphically equivalent interval from core RA3 (346-367 cm) was also sieved to produce corresponding grain size fractions for measuring blank counting rates. Net counting rates and levels of ^{137}Cs and ^{90}Sr for the sieved fractions of RA5:353 are reported in Table 3.

Table 3. Sample RA5:353 Radioactive Contamination of Whole Sediment and Sieved Fractions

Size range (mm)	Type of count*	Net counting rate (cpm/100 mg)	Probability of detection†	^{137}Cs ‡ (dpm/100 mg)	^{90}Sr ‡ (dpm/100 mg)	Sample weight (%)	Weighted net counting rate (cpm/[wt. %] × [100 mg])
Whole sediment	UF	11.83 ± 0.37	1.00	52.7 ± 3.1	2.1 ± 1.7	100	11.83 ± 0.37
	F	0.25 ± 0.10	0.84	(P = 1.00)	(P = 0.88)		
>0.5	UF	35.95 ± 0.66	1.00	137.6 ± 5.4	23.2 ± 2.6	0.261	0.09 ± 0.00
	F	1.67 ± 0.14	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)		
0.25-0.5	UF	14.40 ± 0.41	1.00	–	–	26.972	3.88 ± 0.11
0.125-0.25	UF	10.56 ± 0.18	1.00	46.1 ± 3.2	2.7 ± 2.2	63.115	6.66 ± 0.11
	F	0.26 ± 0.12	0.84	(P = 1.00)	(P = 0.88)		
0.0625-0.125	UF	13.50 ± 0.36	1.00	–	–	9.383	1.27 ± 0.03
<0.0625	UF	32.33 ± 0.76	1.00	147.2 ± 7.8	1.6 ± 4.6	0.268	0.09 ± 0.00
	F	0.46 ± 0.26	0.70	(P = 1.00)	(P = 0.64)		
Total of sieved fractions						99.999	11.99 ± 0.16

* UF – unfiltered; F – filtered.
† Probability of net counting rate exceeding critical level for detection.
‡ P – probability of activity exceeding zero.

Although the silt and clay fraction and the coarse and very coarse sand fraction (grain size greater than 0.5 mm) each comprise less than 0.3% by weight of sample RA5:353, their counting rates on a weight basis were three times greater than those of the intermediate size fractions. This observation is consistent with the results for the mineralogic segregates and other studies of lower Perch Lake Basin sediments (Jackson and Inch, 1980; Patterson and Spoel, 1981) and has been attributed to a relatively higher abundance of micaceous minerals in both the coarsest and finest fractions and the greater specific surface area of the finest fraction. Microscopic examination of grain size fractions of sediments from the glass block site indicates a similar distribution of micaceous minerals. An increased abundance of biotite grains in the finer fractions probably accounts for the higher blank counting rate (4.3 cpm/100 mg) of the silt and clay size fraction of RA3:346.

Relatively high levels of ^{137}Cs occur in both the coarsest and the finest fractions; ^{90}Sr, however, is enriched only in the coarse segregate. The reason for relatively low levels of ^{90}Sr in the fine fraction is not clear because sieved samples of silt and clay laminae (grain size less than 0.0625 mm) from core RA5 generally contained, when detected, significantly more ^{90}Sr than ^{137}Cs. Results have been reported (Jackson and Inch, 1980; Catto, 1978) which show that some silt and clay laminae in the lower Perch Lake Basin contain more interstratified mica-vermiculite and chlorite than the silt and clay size fraction of sandy sediments. This mineralogical difference, however, does not readily explain the distribution of ^{90}Sr contamination with grain size.

DISCUSSION

Distribution of Retained ^{137}Cs

For each of the two sediment samples, RA5:353 and RA5:373, the complete series of mineral segregates can be ranked on a weight basis according to the measured amount of sorbed ^{137}Cs (Table 2) as follows:

biotite-vermiculite >
biotite ≥
opaque or altered feldspar >
muscovite >
hornblende ≧
translucent feldspar ≧
quartz.

This ranking of ^{137}Cs mineral sorbents is the first to be determined for all the abundant minerals in lower Perch Lake Basin sediments and is similar to a partial ranking, reported by Evans (1954), of chemically treated (H_2O_2, $CaCl_2$ and $NaCO_3$) grains, i.e., feldspar ≥ hornblende ≥ quartz (possibly contaminated with feldspar).

Biotite and biotite-vermiculite are only relatively minor components in the lower Perch Lake Basin sediments but they play a disproportionate role in the sorption of ^{137}Cs. As noted by Jackson and Inch (1980), the presence of biotite and biotite-vermiculite is largely responsible for the observed variation in ^{137}Cs contamination on a weight basis for different stratigraphic units, sediment sample sub-splits and grain size fractions. This is not to say, however, that the bulk of the ^{137}Cs in a whole sediment is associated with biotite and biotite-vermiculite. Jackson and Inch (1980) have suggested that most ^{137}Cs is probably sorbed by feldspar due to the greater abundance of this mineral. This suggestion is reasonable, but it may not apply to the 0.42- to 0.50-mm grain size range. In this fraction, translucent feldspar (which is the second poorest sorbent of ^{137}Cs on a weight basis and which is less sericitic than opaque feldspar) comprises over 80% of the total feldspar.

Most of the ^{137}Cs released from the blocks has been retained by sediments at the glass block site and is not electrostatically adsorbed and readily exchangeable with other cations. Nineteen years after emplacement of the blocks, 90% of the total amount of ^{137}Cs released from the glass had travelled no farther than 0.3 m (Walton and Merritt, 1979). Moreover, other researchers (Evans, 1954; Jackson and Inch, 1980) report experimental results which indicate that significant amounts of ^{137}Cs cannot be desorbed easily from contaminated lower Perch Lake Basin sediments.

Distribution of Retained ^{90}Sr

The retention of ^{90}Sr on the sediments at the glass block site has been much less significant than the retention of ^{137}Cs. After 11 years of glass block emplacement, a ^{90}Sr-contaminated ground-water plume could no longer be clearly defined because of advection and dispersion of ^{90}Sr from the site (W.F. Merritt, unpublished data). Only 9 of 20 mineral segregates in the present study contained detectable amounts of ^{90}Sr, and the highest measured level was an order of magnitude less than the highest level of ^{137}Cs (Table 2). Nevertheless, the mineral segregates can be ranked on a weight basis according to the amount of retained ^{90}Sr as follows:

biotite-vermiculite ≧
biotite and hematite-bearing feldspar >
all other mineral segregates (quartz, white feldspar, hornblende and muscovite).

As with ^{137}Cs sorbents, this ranking for ^{90}Sr is the first to be determined for all the most abundant minerals in lower Perch Lake Basin sediments.

Mineral Grain Characteristics

Fewer mineralogic subdivisions can be defined in the ranking of ^{90}Sr sorbents than for ^{137}Cs. Analysis of the data suggests that the difference is due to ^{90}Sr sorption being more strongly dependent on sediment characteristics that are less mineral specific. In particular, retention of ^{90}Sr appears to be related to the presence or absence of Fe and possibly Mn and Al oxide coatings which can be present on any of the mineral grains. For example, the core RA5 segregate of quartz that contained measurable ^{90}Sr also had a visible trace amount of Fe oxide on grains. Similarly, the ^{90}Sr-bearing feldspars were those coloured by hematite or containing very fine grains of either hematite or hematite alteration products. The apparent correlation between retained ^{90}Sr and metal oxides has been supported recently by the results of laboratory research conducted with contaminated lower Perch Lake Basin sediments (Jackson and Inch, 1983). The data show that there is a strong correlation between the amount of ^{90}Sr and the amount of Fe, Mn and Al that can be extracted with acidified 0.1 *M* hydroxylamine hydrochloride. Iron oxide coatings, as observed with the reflecting microscope, were not amenable to characterization with the SEM-EDS technique.

Two other characteristics that could be common to more than one mineral phase and that could potentially cause retention are microfractures and glacial rock flour coatings. Grain microfractures could cause the non-equilibrium sorption of trace amounts of solutes as a result of diffusion-controlled processes. Krinsley and Hyde (1971) have noted that quartz grains from glacial environments are characterized by a great number of cracks (0.1 μm to 0.25 μm wide) which are observable in the cathodoluminescence emission mode of scanning electron microscopes. Lower Perch Lake Basin grains have undoubtedly been fractured during glacial transport. However, since some quartz and feldspar segregates showed non-detectable levels of ^{137}Cs and/or ^{90}Sr, it appears that either microfractures are not common, or if they are abundant, they do not result in significant retention.

The SED-EDS analysis indicated that most of the adhering particles on quartz, feldspar and hornblende grains are likely glacial rock flour. It is thought that the adhering particles did not significantly influence counting rates because the feldspar segregate (010:9-F1) containing the greatest number of adhering particles had the lowest counting rate of all the feldspar segregates. Also, as with microfractures, the non-detectable activity levels of some segregates suggest that this factor is not significant.

^{90}Sr Retention

Previous work has shown that much, but not all, sorbed ^{90}Sr can be readily desorbed from contaminated lower Perch Lake Basin sediments in laboratory experiments (Ophel *et al.*, 1972; Ophel, 1973; Jackson and Inch, 1980; Pickens *et al.*, 1981; Killey, 1982). In addition, discrepancies between the predicted and measured patterns of distribution of sorbed ^{90}Sr at the glass block site in 1963 indicate that some non-equilibrium sorption occurred (Walton and Merritt, 1979; Melnyk *et al.*, 1984).

Calculations incorporating data obtained in this study suggest that the ^{90}Sr which still remains at the glass block site represents a proportion of the originally adsorbed ^{90}Sr that was not readily exchangeable with other cations. Measured levels of retained ^{90}Sr can be compared with predicted levels of sorbed ^{90}Sr calculated from values of K_d^{Sr} determined by Patterson and Spoel (1981) and from the historical concentrations of ^{90}Sr in ground water at the glass block site. The relationship among these variables may be written as

$$(XSr) = K_d^{Sr} (Sr) \qquad (1)$$

where (XSr) is the quantity of Sr sorbed per gram of mineral sorbent and (Sr) is the equilibrium concentration per millilitre of solution.

Patterson and Spoel (1981) used a laboratory batch test technique to determine the values of K_d^{Sr} for various mineral segregates prepared from uncontaminated sediment in core RA1. Segregates weighing between 63 and 98 mg were separated by hand and were batched for 48 h with water obtained from piezometer RAb-2 that had been spiked with a trace amount of ^{85}Sr. The measured values of K_d^{Sr} for different mineral segregates are summarized in Table 4. Table 5 lists the amounts of sorbed ^{90}Sr that would be predicted using Equation 1, the reported K_d^{Sr}

Table 4. Sample RA1:330 Measured K_d^{Sr}'s of Mineral Segregates

Mineral segregate	K_d^{Sr}* (mL/g)
Quartz with minor feldspar	0.4
Mixed feldspar (predominantly white)	4.7
Biotite	3.7
Biotite altered to vermiculite	37
Muscovite	2.6

*Patterson and Spoel (1981).

Table 5. Measured vs. Predicted Amounts of Sorbed ^{90}Sr for Mineral Segregates

Mineral segregate	Measured amount (dpm/100 mg)*	Predicted amount from ground-water concentration of 290 dpm/mL† (dpm/100 mg)	Predicted amount from ground-water concentration of 5.3×10^{-1} dpm/mL‡ (dpm/100 mg)
Quartz	N.D.	12	0.02
Quartz with trace Fe oxide	15 ± 10	–	–
Mixed feldspar (largely white)	–	140	0.25
Translucent pink and opaque orange feldspar	N.D.; 29.7 ± 3.6 32 ± 6; 48 ± 15	–	–
Translucent and opaque white feldspar	N.D.; 14 ± 15	–	–
Biotite	16 ± 12; 51 ± 14	110	0.20
Biotite-vermiculite	208 ± 26; 72 ± 23	1100	2.0
Muscovite	N.D.	75	0.14

* N.D. – Not detected. One measurement obtained per reported value except quartz (N.D. – 2 measurements) and translucent and opaque white feldspar (N.D. – 6 measurements).
† Average ground-water concentration in 1960.
‡ Average ground-water concentration in 1977.

values (Table 4) and ^{90}Sr ground-water concentrations of 290 dpm/mL (1.3×10^{-1} μCi/L) and 5.3×10^{-1} dpm/mL (2.4×10^{-4} μCi/L). The high concentration value is the average concentration of ^{90}Sr recorded for ground water in 1960 in a piezometer located 1.8 m downgradient from the blocks (Merritt, 1976). The low value is the average concentration of ^{90}Sr in water obtained during 1977 (Walton and Merritt, 1979) and is representative of average annual ^{90}Sr concentrations since 1966. Table 5 also lists the measured amounts of sorbed ^{90}Sr that were determined during this study (Table 2).

Strict comparisons, of course, cannot be made between the measured amounts of ^{90}Sr sorbed by core RA5 segregates and the amounts calculated using Equation 1 and K_d^{Sr} and ^{90}Sr concentration data. The sediments from core RA5 (located 0.4 m downgradient from the glass blocks) probably were exposed to higher levels of ^{90}Sr than were measured in the sampler (located 1.8 m downgradient) in 1960. Also, the range in grain size of batch test segregates was not reported by Patterson and Spoel (1981). A visual inspection of the batch test grains at the time of their preparation indicated that they were, on average, smaller than the grains segregated from core RA5, and so the batch test grains would be expected to sorb a greater amount of ^{90}Sr on a unit weight basis.

The measured amounts of ^{90}Sr on the mineral segregates are much lower than the quantities predicted using the K_d^{Sr} results and the 1960 ground-water concentration value of 290 dpm/mL ^{90}Sr (compare columns 2 and 3 in Table 5). Since the concentration value for ground water is probably a conservative estimate of the maximum level of exposure experienced by the sediments, the data suggest that for biotite and biotite-vermiculite less than 20% of the ^{90}Sr which was likely sorbed soon after emplacement and leaching of the blocks is still retained.

In comparison with the results based on the average ^{90}Sr concentration in 1960, measured quantities of retained ^{90}Sr are much higher than those calculated using the 1977 ground-water ^{90}Sr concentration of 5.3×10^{-1} dpm/mL (compare columns 2 and 4, Table 5). These large differences, particularly considering that the sediments had been exposed to the dilute ground waters for over 10 years, emphasize the conclusion that the remaining ^{90}Sr on the quartz (with trace Fe oxide), pink and orange feldspar, biotite and biotite-vermiculite is very strongly sorbed and not readily exchangeable.

The results of the study are consistent with observations by other researchers that a variety of sites, in terms of degree of reversibility, exist on C.R.N.L. sediments for sorption of ^{90}Sr. Whereas all ^{90}Sr sorbed during three-day batch experiments is readily exchangeable (Killey, 1982), only 20% to 50% of ^{90}Sr sorbed during contact times of approximately 20 to 25 years can be removed with $CaCl_2$ or $SrCl_2$ solution desorbing treatments (Jackson and Inch, 1983 and 1980; Killey, 1982). Killey (personal communication) also has noted that non-equilibrium, slow desorption of ^{90}Sr results in higher apparent K_d^{Sr} values in older portions of a contaminant plume. The work of these researchers

indicates that most of the ^{90}Sr retained by the sediments is associated with Fe, Mn, and Al oxides. Moreover, the results of modelling the glass block site soil survey data obtained in 1963 are improved when two sorption mechanisms are incorporated (Melnyk *et al.*, 1984).

CONCLUSIONS

The following conclusions have been reached:

1. The radionuclide ^{137}Cs has been strongly retained by the sediments and is not readily exchangeable with other cations. The major mineral phases that retain the cesium are the layer silicates, principally biotite-vermiculite and biotite. Significant retention also occurs on feldspars which contain alteration products such as sericite.

2. Compared with ^{137}Cs, ^{90}Sr is much less strongly retained and its distribution in the sediment is less mineral-specific. The most effective mineral-sorbent phases in the sediments are biotite-vermiculite and biotite. Results of this and other studies indicate that a spectrum of ^{90}Sr sorption sites, ranging from readily reversible to very slowly reversible, exists on the sediment. The retained ^{90}Sr is associated in significant proportion with oxides, particularly of iron.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors wish to thank the Water Resources Research Support Program of Environment Canada and Atomic Energy of Canada Limited for providing funding in support of this project. Special acknowledgment is extended to R.E. Jackson, National Hydrology Research Institute, Environment Canada, and members, particularly W.F. Merritt (retired), of the Environmental Research Branch, Chalk River Nuclear Laboratories, Atomic Energy of Canada Limited.

REFERENCES

Berak, L. 1963. The sorption of microstrontium and microcesium on the silicate minerals and rocks. Nuclear Research Institute of the Czechoslovak Academy of Science, UJV-528-63, Prague, Czechoslovakia, 38 pp.

Catto, N.R. 1978. The Late Quaternary Geology of the Chalk River Region, Ontario and Quebec. BSc. Thesis, Queen's University, Kingston, Ontario, 321 pp.

Catto, N.R., R.J. Patterson and W.A. Gorman. 1982. The Late Quaternary geology of the Chalk River region, Ontario and Quebec. Can. J. Earth Sci. 19: 1218-1231.

Champ, D.R. and W.F. Merritt. 1981. Particulate transport of cesium in groundwater. Presented at the Second Annual Meeting of the Canadian Nuclear Society, Ottawa, Canada, June 1981. Atomic Energy of Canada Limited, AECL-7440, 4 pp.

Cherry, J.A., R.E. Jackson, D.C. McNaughton, J.F. Pickens and H. Woldetensae. 1975. Physical hydrogeology of the lower Perch Lake Basin. *In* Hydrological Studies on a Small Basin on the Canadian Shield, P.J. Barry (ed.), Atomic Energy of Canada Limited, AECL-5041/I, Chalk River, Ontario, pp. 625-680.

Currie, L.A. 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination – application to radiochemistry. Anal. Chem. 40: 586-593.

Deer, W.A., R.A. Howie and J. Zussman. 1966. *An Introduction to the Rock-Forming Minerals.* Longman Group Ltd., London, England, 528 pp.

Douglas, L.A. 1977. Vermiculites. *In* Minerals in Soil Environments, J.B. Dixon and S.B. Weed (eds.), Soil Sci. Soc. Am., Madison, WI, pp. 259-292.

Evans, E.J. 1954. Properties of disposal area soil. Unpublished manuscript. Atomic Energy of Canada Ltd., Chalk River, Ontario.

Folk, R.L. and W.C. Ward. 1957. Brazos River bar, a study in the significance of grain-size parameters. J. Sediment. Petrol. 27: 3-27.

Francis, C.W. and F.S. Brinkley. 1976. Preferential adsorption of ^{137}Cs to micaceous minerals in contaminated freshwater sediment. Nature, 260: 511-513.

Friedlander, G., J.W. Kennedy and J.M. Miller. 1964. *Nuclear and Radiochemistry*. John Wiley and Sons Ltd., New York, N.Y., 585 pp.

Jackson, M.L., S.Y. Lee, J.L. Brown, I.B. Sachs and J.K. Syers. 1973. Scanning electron microscopy of hydrous metal oxide crusts intercalated in naturally weathered micaceous vermiculite. Soil Sci. Soc. Am., Proc. 37: 127-131.

Jackson, R.E. and K.J. Inch. 1980. Hydrogeochemical processes affecting the migration of radionuclides in a fluvial sand aquifer at the Chalk River Nuclear Laboratories. NHRI Paper No. 7, Ottawa, Ontario, 58 pp.

Jackson, R.E. and K.J. Inch. 1983. Partitioning of ^{90}Sr among aqueous and mineral species in a contaminated aquifer. Environ. Sci. Technol. 17 (4): 231-237.

Killey, R.W.D. 1982. Groundwater transport of reactive contaminants near the CRNL waste management area: some realities. *In* International Conference on Radioactive Waste Management, Winnipeg, Manitoba, Can. Nucl. Society, pp. 502-509.

Kinniburgh, D.G., J.K. Syers and M.L. Jackson. 1975. Specific adsorption of trace amounts of calcium and strontium by hydrous oxides of iron and aluminum. Soil Sci. Soc. Am. Proc. 39: 464-470.

Krinsley, D.H. and J. Donahue. 1968. Environmental interpretation of sand grain surface textures by electron microscopy. Geol. Soc. Am. Bull. 79: 743-748.

Krinsley, D.H. and P.W. Hyde. 1971. Cathodoluminescence studies of sediments. Scanning Electron Microsc. 1971, Part 1, pp. 409-416.

Krinsley, D.H. and J.C. Doornkamp. 1973. *Atlas of Quartz Sand Textures.* Cambridge University Press, Cambridge, England, 91 pp.

Lyon, K.E. 1981. Retention of ^{137}Cs and ^{90}Sr by mineral sorbents in a shallow sand aquifer. M.Sc. Thesis, Queen's University, Kingston, Ontario, Canada, 262 pp.

Melnyk, T.W., F.B. Walton and L.H. Johnson. 1984. High-level waste glass burial test: leaching and migration of fission products. *In* Nuclear and Chemical Waste Management, Vol. 5, Pergamon Press Ltd., pp. 49-62.

Merritt, W.F. 1971. Identification and measurement of trace elements in fresh water by neutron activation. *In* Proc. of the international symposium on identification and measurement of environmental pollutants, National Research Council of Canada, Ottawa, Ontario, pp. 358-362.

Merritt, W.F. 1976. The leaching of radioactivity from highly radioactive glass blocks buried below the water table: Fifteen years of results. Atomic Energy of Canada Limited, AECL-5317, Chalk River, Ontario, 10 pp.

Merritt, W.F. and P.J. Parsons. 1964. The safe burial of high-level fission product solutions incorporated into glass. Health Phys. 10: 655-664.

Moorehouse, W.W. 1959. *The Study of Rocks in Thin Section.* Harper & Row, Publishers, New York, NY, 514 pp.

Murray, J.W. 1975. The interaction of metal ions at the manganese dioxide – solution interface. Geochim. Cosmochim. Acta, 39: 505-519.

Ophel, I.L. 1973. The environmental capacity of freshwaters for waste radionuclides. *In* Environmental Behaviour of Radionuclides Released in the Nuclear Industry, IAEA-SM-172/45, Vienna, Austria, pp. 613-624 (Atomic Energy of Canada Limited, AECL-4742, Chalk River, Ontario).

Ophel, I.L., C.D. Fraser and J.M. Judd. 1972. Strontium concentration factors in biota and bottom sediments of a freshwater lake. *In* Radioecology Applied to the Protection of Man and His Environment, Commission of the European Communities, EUR-4800, Luxembourg, pp. 509-530.

Patterson, R.J. 1979. Progress report for the project "Geochemical controls on the mobility of radionuclides in the shallow groundwater flow system, Chalk River, Ont." Department of Geological Sciences, Queen's University, Kingston, Ontario, 27 pp.

Patterson, R.J. and T. Spoel. 1981. Laboratory measurements of the strontium distribution coefficient K_d^{Sr} for sediments from a shallow sand aquifer. Water Resour. Res. 17 (3): 513-520.

Patterson, R.J., S.K. Frape, L.S. Dykes and R.A. McLeod. 1978. A coring and squeezing technique for the detailed study of subsurface water chemistry. Can. J. Earth Sci. 15: 162-169.

Pickens, J.F., W.F. Merritt and J.A. Cherry. 1980. Field determination of the physical transport parameters in a sandy aquifer. *In* The Use of Nuclear Techniques in Water Pollution Studies, IAEA, Vienna, Austria, pp. 239-265.

Pickens, J.F., R.E. Jackson, K.J. Inch and W.F. Merritt. 1981. Measurement of distribution coefficients using a radial-injection dual-tracer test. Water Resour. Res. 17 (3) 529-544.

Powers, M.C. 1953. A new roundness scale for sedimentary particles. J. Sed. Pet. 23: 117-119.

Reineck, H.E. and I.B. Singh. 1973. *Depositional Sedimentary Environments.* Springer-Verlag, New York, NY, 439 pp.

Rodgers, G.P. and H.D. Holland. 1979. Weathering products within microcracks in feldspars. Geology, 7: 278-280.

Sawhney, B.L. 1970. Potassium and cesium ion selectivity in relation to clay mineral structure. Clays Clay Miner. 18: 47-52.

Snedecor, G.W. and W.G. Cochran. 1967. *Statistical Methods.* Iowa State University Press, Ames, IA, 594 pp.

Tamura, T. 1964. Reactions of cesium-137 and strontium-90 with soil minerals and sesquioxides. Eighth International Congress of Soil Chemistry, 3: 465-478.

Tamura, T. 1965. Selective sorption reactions of strontium with soil minerals. Nucl. Saf. 7. 99-103.

Tamura, T. and E.G. Struxness. 1963. Reactions affecting strontium removal from radioactive wastes. Health Phys. 9: 667-704.

Walker, T.R., B. Waugh and A.J. Crone. 1978. Diagenesis in first-cycle desert alluvium of Cenozoic age, southwestern United States and northwestern Mexico. Geol. Soc. Am. Bull. 89: 19-32.

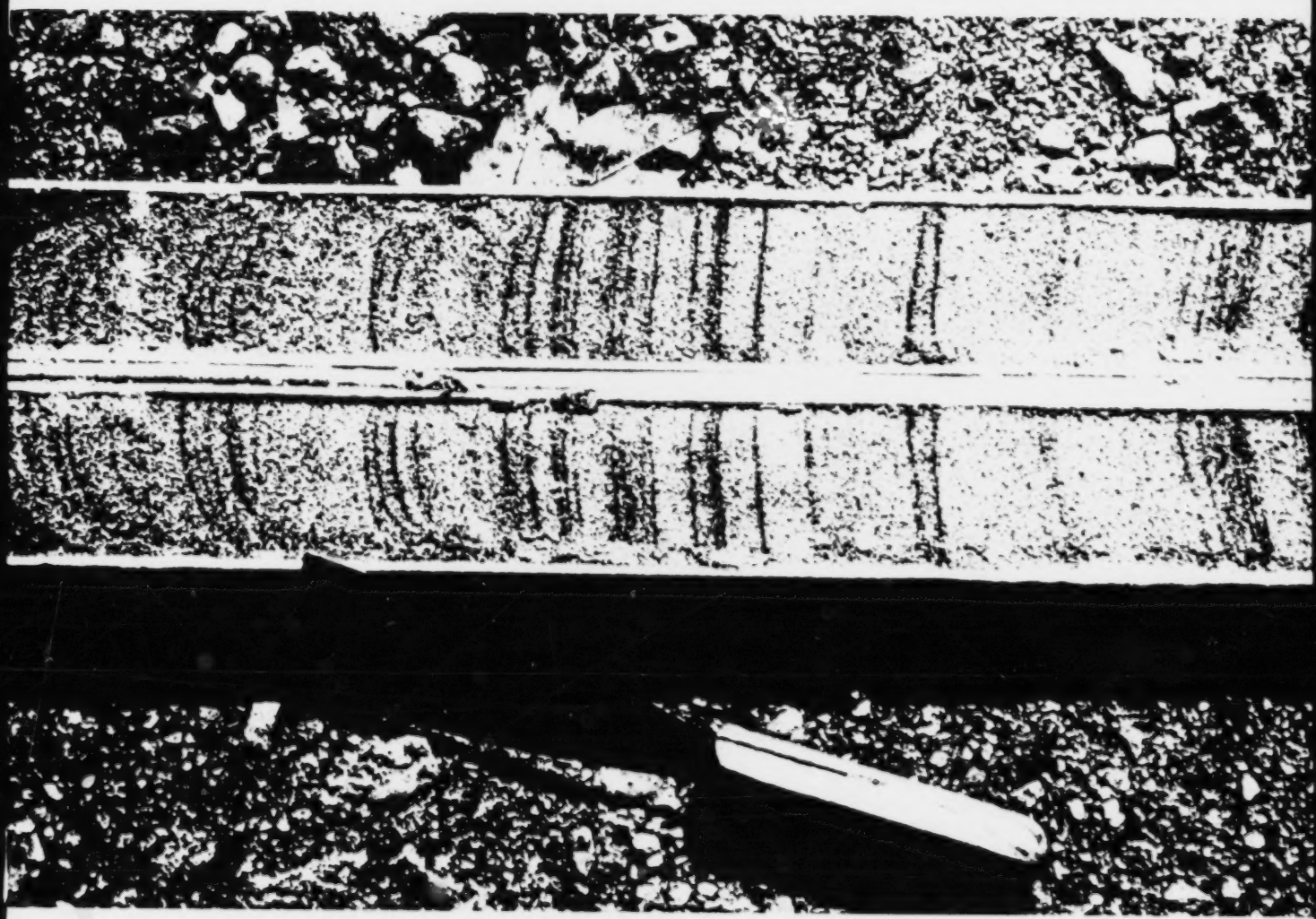
Walton, F.B. and W.F. Merritt. 1979. Long-term extrapolation of laboratory glass leaching data for the production of fission product release under actual groundwater conditions. *In* Scientific Basis for Nuclear Waste Management, Vol. 2. G.J. McCarthy (ed.), Plenum Press, New York, NY, pp. 155-166.

Wang, H.F. and M.P. Anderson. 1982. *Introduction to Groundwater Modeling, Finite Difference and Finite Element Methods.* W.M. Freeman and Company, San Francisco, Ca.

Environnement Canada Environment Canada

Rétention de ^{137}Cs et de ^{90}Sr par les minéraux adsorbants situés au voisinage de déchets nucléaires vitrifiés

K.E. Lyon et R.J. Patterson



RAPPORT N° 27 DE L'INRH
ÉTUDE N° 148, SÉRIE SCIENTIFIQUE DE LA DGEI

Photo de la converture :

Coupe de la carotte RA5, lieu d'enfouissement
des blocs de verre.

Environnement Canada Environment Canada

Rétention de ^{137}Cs et de ^{90}Sr par les minéraux adsorbants situés au voisinage de déchets nucléaires vitrifiés

K.E. Lyon* and R.J. Patterson†

* 91 Clovelly Avenue, Toronto (Ontario) M6E 2E7

† Environnement Canada, Institut national de recherches en hydrologie, Laboratoires du chemin River, Ottawa (Ontario) K1A 1C8. Auparavant rattaché au département des sciences géologiques, Université Queen's, Kingston (Ontario) K7L 3N6.

RAPPORT N° 27 DE L'INRH

ÉTUDE N° 148, SÉRIE SCIENTIFIQUE DE LA DGEI

INSTITUT NATIONAL DE RECHERCHES EN HYDROLOGIE
DIRECTION GÉNÉRALE DES EAUX INTÉRIEURES
OTTAWA, CANADA, 1986

©Ministre des Approvisionnements et Services Canada 1986

Nº de cat. En 36-502/148F

ISBN 0-662-93746-5

Table des matières

	Page
RÉSUMÉ	v
ABSTRACT	vii
INTRODUCTION	1
TRAVAUX ANTÉRIEURS	3
Hydrogéologie	3
Étude des radionucléides	3
MÉTHODES	4
Échantillons d'eau souterraine	4
Échantillons de sédiments et leurs caractéristiques	5
Préparation des échantillons pour le comptage	5
Comptage des échantillons et réglage des instruments	6
Données statistiques (comptage) et calcul de la radioactivité	6
RÉSULTATS	7
Niveaux piézométriques et chimie	7
Stratigraphie et sédimentologie	8
Activité des échantillons de sédiments entiers	8
Adsorption de ^{137}Cs et de ^{90}Sr par les fractions minérales	9
Quartz	9
Hornblende	12
Feldspath	12
Micas	14
Activité des fractions de sédiments tamisés	15
DISCUSSION	16
Répartition du ^{137}Cs retenu	16
Répartition du ^{90}Sr retenu	16
Caractéristiques des grains minéraux	16
Rétention du ^{90}Sr	17
CONCLUSIONS	19
REMERCIEMENTS	19
RÉFÉRENCES	19

Tableaux

Page

1. Analyse chimique des eaux souterraines réalisée au moyen de la série de piézomètres RAb. 8

2. Taux de comptage et contamination radioactive des grains minéraux séparés des échantillons RA5:353, RA5:373 et 010:9 10

3. Contamination radioactive du sédiment entier et des fractions tamisées de l'échantillon RA5:353 15

4. Valeur mesurée de K_d^{Sr} pour diverses fractions minérales de l'échantillon RA1:330 . . . 17

5. Comparaison des quantités mesurées et des quantités calculées de ^{90}Sr adsorbé par les fractions minérales 18

Illustrations

Figure 1. Emplacement des laboratoires nucléaires de Chalk River et site du présent travail dans le bassin du lac Perch 2

Figure 2. Emplacement des blocs de verre, des piézomètres et des carottes sur le site 3

Figure 3. Distribution verticale des blocs de verre 3

Figure 4. Vue en plan de la migration de ^{137}Cs et de ^{90}Sr en contrebas des blocs de verre en 1963 4

Figure 5. Stratigraphie des sédiments et distribution de la radioactivité dans la carotte RA5 9

Résumé

En juin 1960, 25 hémisphères de déchets nucléaires vitrifiés de 14 cm de diamètre (blocs de verre) ont été enfouis dans un aquifère sablonneux et peu profond de la partie inférieure du bassin du lac Perch, aux Laboratoires nucléaires de Chalk River, en Ontario. La lixiviation des blocs s'est presque toute produite durant les 18 premiers mois, ce qui fait que l'expérience équivalait à une injection ponctuelle de ^{137}Cs et de ^{90}Sr. Après environ 11 ans, la majeure partie du ^{90}Sr libéré s'était déplacée horizontalement et dispersée, tandis que presque tout le ^{137}Cs ne s'était déplacé que de 0.3 m des blocs.

En 1978, on a installé trois piézomètres et extrait cinq carottes des sédiments du lieu d'enfouissement. Des grains de sable purs du point de vue minéralogique et séparés par ségrégation ont été préparés à la main puis caractérisés à l'aide de microscopes binoculaires, polarisants et électroniques à balayage, par diffraction des rayons X et par spectroscopie à rayons X dispersive. On a également mis au point une technique pour mesurer de très petites quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr en comptant de petits échantillons de sédiments (de 10 à 100 mg) au moyen d'un compteur proportionnel à fenêtre mince.

Les résultats montrent que des particules de biotite altérée (biotite-vermiculite), de biotite, de muscovite, de hornblende et de feldspath séricitisé, de la grosseur des grains de sable, sont capables de retenir le ^{137}Cs pendant une période de 18 ans et que des particules de biotite-vermiculite, de biotite et de feldspath contenant de l'hématite (microline en grande partie) peuvent retenir de faibles quantités de ^{90}Sr sur une même période. Les quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr adsorbées par les particules minérales variaient de l'indécelable à environ 380 et 35 becquerels par gramme de sédiment, respectivement. Toute la série des minéraux séparés par ségrégation peut être classée pondéralement selon les quantités retenues de ^{137}Cs et de ^{90}Sr. Pour le ^{137}Cs :

biotite-vermiculite >
biotite ≥
feldspath opaque ou altéré >
muscovite >
hornblende ≧
feldspath translucide ≧
quartz.

et pour le ^{90}Sr :

biotite-vermiculite ≧
biotite et feldspath contenant de l'hématite >
tous les autres minéraux (quartz, feldspath blanc, hornblende et muscovite).

Les données sur la qualité des eaux souterraines montrent que la rétention n'est aucunement le résultat de la précipitation de minéraux du strontium ou du césium. Les résultats concernant les ségrégations semblent toutefois montrer que les oxydes de fer jouent un rôle important dans la rétention du ^{90}Sr, tandis que le ^{137}Cs paraît surtout retenu comme cation entre les couches de silicates. Les résultats d'autres recherches et les calculs dans lesquels on tient compte des concentrations de ^{90}Sr dans l'eau souterraine et des valeurs expérimentales de K_d^{Sr} dans les minéraux montrent que l'adsorption de ^{90}Sr varie localement dans les sédiments, du rapidement réversible au très lentement réversible.

Abstract

In June 1960, twenty-five 14-cm diameter hemispheres of vitrified nuclear waste (glass blocks) were buried in a shallow sand aquifer in the lower Perch Lake Basin, Chalk River Nuclear Laboratories, Ontario, Canada. Almost all leaching of the glass blocks occurred during the first 18 months of emplacement, and consequently the burial experiment approximated a single-injection source of ^{137}Cs and ^{90}Sr. After about 11 years, most of the ^{90}Sr that was released had been advected and dispersed from the site, whereas the bulk of the ^{137}Cs had travelled no more than 0.3 m from the blocks.

Three piezometers were installed and five cores of sediment were collected at the glass block site in 1978. Mineralogically pure segregates of sand grains were prepared by hand and characterized using binocular, petrographic and scanning electron microscopy, X-ray diffraction, and energy-dispersive X-ray spectroscopy. A technique also was developed to measure very low levels of ^{137}Cs and ^{90}Sr by counting small (10-100 mg) sediment samples directly with a thin window, flow proportional counter.

Results show that sand-sized grains of altered biotite (biotite-vermiculite), biotite, muscovite, hornblende and sericitized feldspar are able to retain ^{137}Cs over a period of 18 years, and that grains of biotite-vermiculite, biotite and hermatite-bearing feldspar (largely microcline) can retain low levels of ^{90}Sr over the same period of time. The amounts of ^{137}Cs and ^{90}Sr sorbed by the mineral grains ranged from undetectable levels to approximately 380 and 35 becquerels/gram sediment, respectively. The complete series of mineral segregates can be ranked on a weight basis according to the amounts of retained ^{137}Cs and ^{90}Sr. For ^{137}Cs the ranking is:

biotite-vermiculite >
biotite ≥
opaque or altered feldspar >
muscovite >
hornblende ≧
translucent feldspar ≧
quartz.

and for ^{90}Sr:

biotite-vermiculite ≧
biotite and hematite-bearing feldspar >
all other mineral segregates (quartz, white feldspar, hornblende and muscovite).

Ground-water quality data indicate that none of the retention is the result of the precipitation of strontium or cesium minerals. Results for the mineral segregates, however, suggest that iron oxides play a significant role in the retention of ^{90}Sr, whereas ^{137}Cs appears to be retained principally as an interlayer cation in layer silicates. Results of other studies and calculations incorporating ground-water ^{90}Sr concentration data and experimental K_d^{Sr} values for the minerals indicate that a spectrum of adsorption sites, ranging from readily reversible to very slowly reversible, exists on the sediment for ^{90}Sr.

Rétention de ^{137}Cs et de ^{90}Sr par les minéraux adsorbants situés au voisinage de déchets nucléaires vitrifiés

K.E. Lyon et R.J. Patterson

INTRODUCTION

Une gestion sûre des déchets nucléaires nécessite une parfaite compréhension du comportement des radionucléides tels que ^{90}Sr et ^{137}Cs dans les réseaux d'écoulement des eaux souterraines. La plupart des modèles chimiques servant à simuler le transport des radionucléides dans ces réseaux comportent un coefficient de distribution (K_d) permettant d'évaluer le ralentissement des solutés par les matériaux aquifères (Wang et Anderson, 1982). Le recours à un tel coefficient suppose que l'équilibre local est promptement atteint. Les phénomènes observés sur le terrain ou en laboratoire indiquent cependant que les réactions de sorption ne sont pas toutes aisément réversibles et qu'une rétention des cations tels que ^{90}Sr et ^{137}Cs peut en particulier se produire.

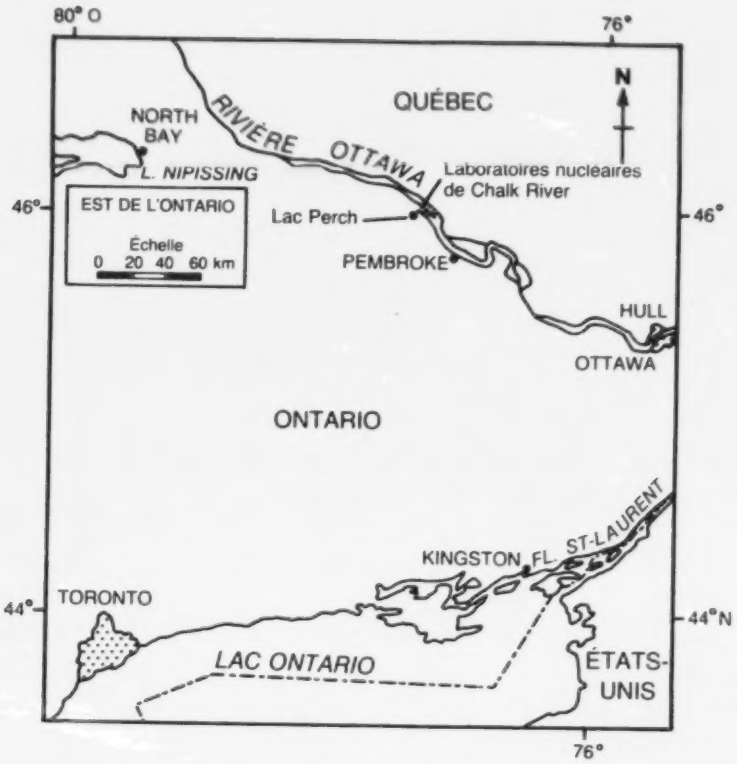
Dans la présente étude, nous avons employé le terme «rétention» pour décrire une désorption relativement lente (portant sur des périodes excédant plusieurs jours) conduisant par conséquent à une sorption hors équilibre. La rétention des cations par les grains minéraux peut résulter d'un processus chimique tel que l'adsorption spécifique ou la sorption entre les feuillets des phyllosilicates, ou d'un processus physique tel que la diffusion dans les fractures intergranulaires.

Les sédiments peuvent retenir chimiquement Cs et Sr, bien que les mécanismes de rétention de ces deux éléments diffèrent. La rétention de Cs résulte de la «fixation» de très faibles quantités de la forme cationique de cet élément entre les feuillets des phyllosilicates 2:1 tels que l'illite et les micas ayant un espacement interplanaire d'environ 10 angströms. Bien que la vermiculite possède un espacement interplanaire de 14.4 angströms (Deer et coll., 1966), ce minéral est aussi un «fixateur de Cs» du fait que sa structure en feuillets s'effondre lorsqu'il y a saturation en K ou en Cs. La plupart des recherches antérieures sur la sorption de ^{137}Cs par les phyllosilicates cités ou par d'autres, récapitulées par Tamura (1964), ont été menées en laboratoire à l'aide de minéraux de référence. L'analyse des fractions minérales séparées provenant des sédiments contaminés a confirmé par la suite la grande sélectivité de la vermiculite et des phyllosilicates «10 angströms» à l'égard de ^{137}Cs (Francis et Brinkley, 1976).

La rétention du Sr par les sédiments résulte apparemment de son adsorption spécifique par des oxydes de Fe, de Mn et de Al (le terme «oxyde» est ici employé dans son sens général et inclut les oxydes hydratés et anhydres, les hydroxydes et les composés oxyhydroxydés). Tamura et Struxness (1963) et Tamura (1965) ont rapporté que l'alumine et les oxydes hydratés de Fe et de Al manifestaient une forte affinité pour Sr relativement à Na en matière d'adsorption. Par la suite, Murray (1975) et Kinniburgh et coll. (1975) ont montré que le bioxyde hydraté de Mn, les oxydes hydratés de Fe et de Al et l'hydroxyde amorphe de Al adsorbent spécifiquement des quantités très faibles de Ca et de Sr pour des valeurs du pH inférieures et supérieures aux points de charge nulle par le biais de réactions d'échange proton-métal.

Une expérience prolongée, menée aux Laboratoires nucléaires de Chalk River (L.N.C.R.) (figure 1), a fourni l'occasion d'étudier la rétention du ^{90}Sr et du ^{137}Cs. En juin 1960, 25 hémisphères de déchets nucléaires vitrifiés, d'un diamètre de 14 cm, ont été enfouis au-dessous du niveau de la nappe phréatique dans la partie inférieure du bassin du lac Perch (figure 1). Des membres du personnel d'Énergie atomique du Canada Limitée ont par la suite contrôlé l'eau souterraine et les sédiments aquifères et constaté que la plupart des radionucléides lessivés en provenance des hémisphères étaient libérés dans les 18 mois suivant l'enfouissement (Merritt, 1976). Vu la rapidité de la lixiviation, il fut possible d'assimiler ce processus de libération à une expérience de traçage par injection ponctuelle.

La présente étude, exécutée 18 ans après l'enfouissement des blocs, a essentiellement visé à identifier les principaux minéraux susceptibles de fixer ^{137}Cs et ^{90}Sr dans les sédiments voisins des blocs de verre. À cet effet, il a fallu mettre au point une méthode radioanalytique permettant la détermination simultanée de faibles quantités (inférieures à 380 Bq/g de sédiment) de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans de petits échantillons (10 à 20 mg) minéralogiquement purs susceptibles d'être séparés des sédiments entiers.



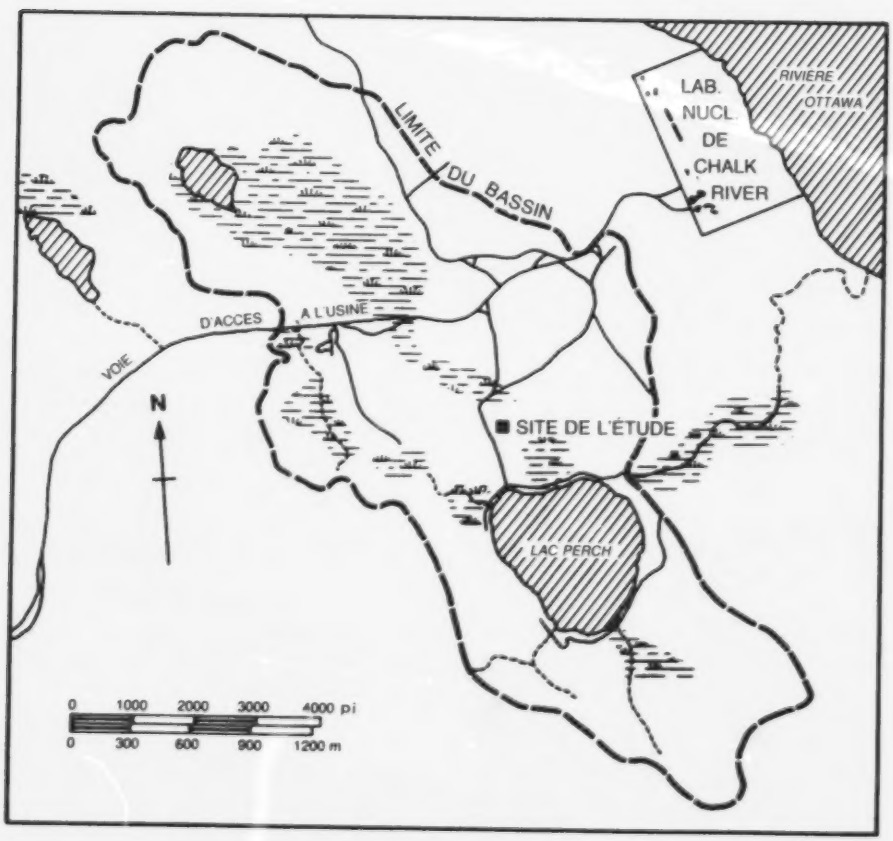


Figure 1. Emplacement des Laboratoires nucléaires de Chalk River et site du présent travail dans le bassin du lac Perch.

TRAVAUX ANTÉRIEURS

Hydrogéologie

Les sédiments superficiels de la partie inférieure du bassin du lac Perch se composent principalement de sables fins bien classés qui se sont déposés pendant une période de crue de la rivière Ottawa, à peu près entre 10 300 et 9800 av. J.-C. (Catto et coll., 1982). La minéralogie des sables montre qu'ils proviennent du socle de la province précambrienne de Grenville qui, dans cette région, se compose principalement de gneiss granitique et de granite. Les principaux minéraux présents dans les sédiments sont le quartz et le plagioclase séricitisé (albite à andésine); on y trouve aussi, en moindres proportions, du feldspath potassique séricitisé, de la biotite, de la biotite-vermiculite interstratifiée et de la hornblende (Jackson et Inch, 1980). La capacité d'échange cationique des sédiments se situe entre 0.3 et 1.75 meq/100 g; c'est le calcium qui représente le principal cation échangeable (Jackson et Inch, 1980; Patterson et Spoel, 1981).

Selon les saisons, l'eau souterraine se situe généralement à une profondeur variant de 1 à 1.5 m. Grâce à plusieurs méthodes, on a estimé que les conductivités hydrauliques horizontales des sables variaient de 1×10^{-3} à 5×10^{-3} cm/s (Cherry et coll., 1975). Les eaux souterraines peu profondes circulent à une vitesse horizontale moyenne d'environ 15 à 20 cm/jour en direction sud-est (Merritt et Parsons, 1964; Pickens et coll., 1980).

Étude des radionucléides

Les 25 blocs de verre radioactifs furent enterrés dans le site de l'étude en 1960 dans le but d'étudier les taux de lixiviation des déchets de retraitement du combustible à uranium irradié qui avaient été enrobés dans de la syénite néphélinique vitrifiée (Merritt et Parsons, 1964). Les blocs, qui contenaient chacun environ 850 GBq de ^{137}Cs, 740 GBq de ^{90}Sr, 70 GBq de ^{144}Ce et 7 GBq de ^{106}Ru, furent disposés selon une grille verticale en deux dimensions orientée à peu près perpendiculairement à la direction d'écoulement de l'eau souterraine et située à des profondeurs variant de 3.0 à 3.7 m au-dessous de la surface du sol (figures 2 et 3). Le personnel d'Énergie atomique du Canada Limitée étudia le lessivage du verre radioactif et la libération de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans le réseau d'écoulement des eaux souterraines en contrôlant régulièrement ces eaux

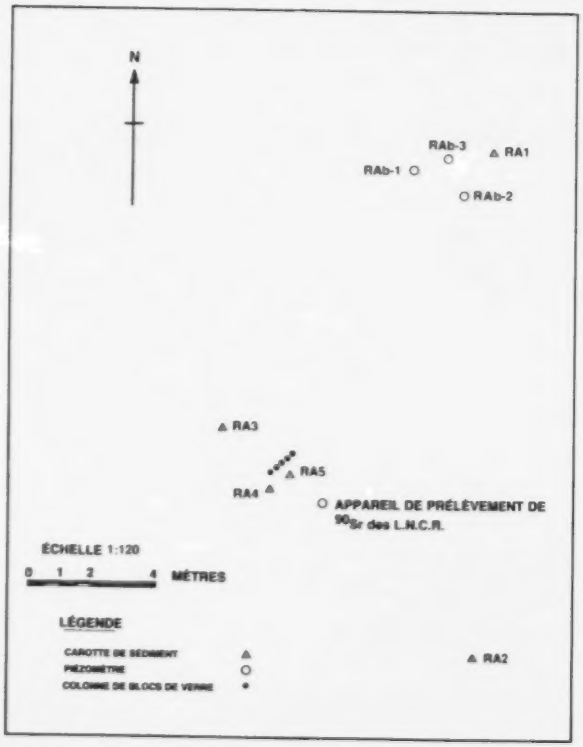


Figure 2. Emplacement des blocs de verre, des piézomètres et des carottes sur le site.

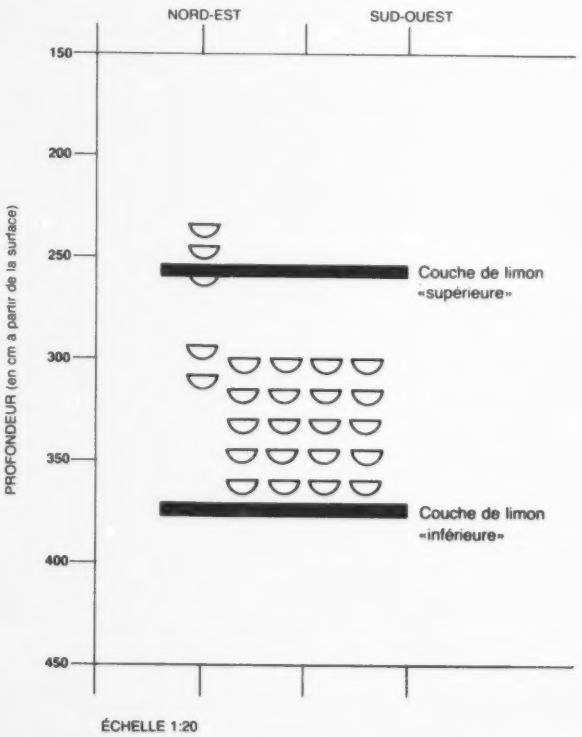


Figure 3. Distribution verticale des blocs de verre (d'après Merritt et Parsons, 1964).

ainsi que les sédiments aquifères, en procédant à l'examen direct d'un hémisphère extrait du site en 1978, en menant en laboratoire des essais de lixiviation de blocs de verre et des expériences sur colonnes de sol, enfin en établissant des modèles mathématiques à partir des résultats obtenus sur le terrain.

La concentration annuelle moyenne de ^{90}Sr dans l'eau souterraine à 1.8 m en contrebas des blocs est passée de 4.8×10^{3} Bq/L (1.3×10^{-1} μCi/L) en 1960 à 4.4 Bq/L (1.2×10^{-4} μCi/L) en 1973 et 1974 (Merritt, 1976). En se fondant sur cette observation, Merritt a estimé que 94 % (52 MBq) du ^{90}Sr lessivé à partir du verre avait été libéré dans les 18 mois faisant suite à l'enfouissement. En 1963, comme le montre la figure 4, on constatait la présence d'un panache de contamination de ^{90}Sr à une distance de 11.9 m en contrebas des blocs (Merritt et Parsons, 1964). Toutefois, en 1971, on n'observait plus que de très faibles

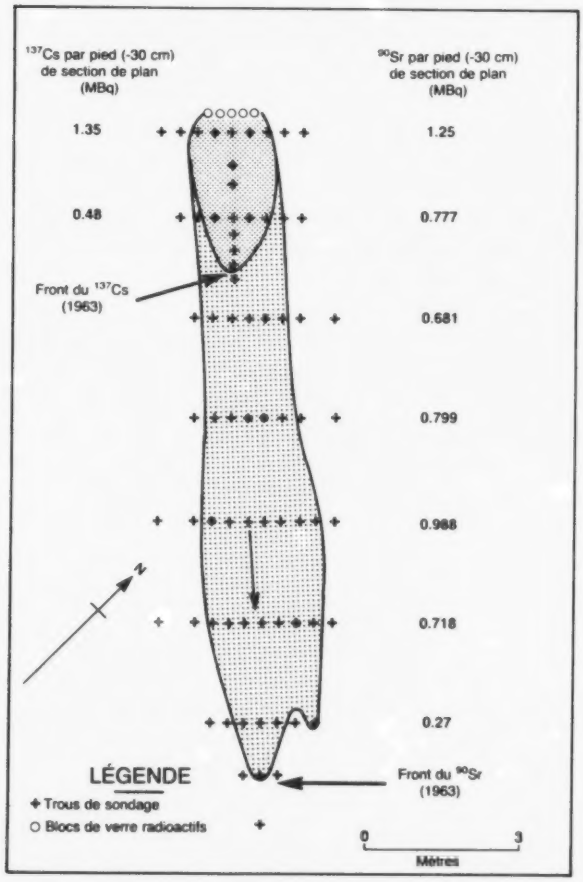


Figure 4. Vue en plan de la migration de ^{137}Cs et de ^{90}Sr en contrebas des blocs de verre en 1963 (d'après Merritt et Parsons, 1964).

quantités de cet élément en raison de son transport et de sa dispersion par l'eau souterraine (W.F. Merritt, données inédites).

Walton et Merritt (1979) ont comparé les résultats de l'analyse du sol de 1963 (figure 4) avec les résultats prédits par un modèle unidimensionnel de transport par l'eau souterraine combinant convection et dispersion en adoptant un K_d^{Sr} compris entre 4.6 et 7 mL/g. Les résultats prédits concordaient à un ordre de grandeur près avec les teneurs du sol en ^{90}Sr mesurées, bien qu'on ait relevé cependant certains écarts. Plus tard, Melnyk et coll. (1984) obtinrent une meilleure concordance des prévisions et des données recueillies sur le terrain en supposant qu'intervenaient deux mécanismes de sorption : une réaction d'échange d'ions en équilibre et une réaction de sorption d'oxyhydroxydes hors équilibre. La demi-vie de la réaction de sorption d'oxyhydroxydes fut estimée à 2.0 ± 0.2 ans.

Comparé au ^{90}Sr, le transport du ^{137}Cs libéré sur le site présente des caractéristiques très différentes (figure 4). En raison de sa forte sorption par les sédiments, le ^{137}Cs n'a jamais été détecté dans les échantillons d'eau souterraine (W.F. Merritt, données non publiées). En se basant sur les résultats d'une analyse des sédiments effectuée en 1979, Walton et Merritt (1979) conclurent que plus de 90 % de la quantité totale de ^{137}Cs lessivée à partir du verre n'avait pas parcouru plus de 0.3 m (de semblables résultats avaient été obtenus lors de l'analyse du sol de 1963). On a toutefois détecté un faible panache de ^{137}Cs jusqu'à 7.5 m en contrebas des blocs. Les expériences sur colonnes de sol ont par la suite démontré que ce transport touche le matériel particulaire à grain fin (généralement d'un diamètre compris entre 0.2 et 1.0 μm) et que le phénomène de formation et de libération de ces particules est dû à un effet microbiologique (Champ et Merritt, 1981).

MÉTHODES

Échantillons d'eau souterraine

On fabriqua trois piézomètres au moyen de tuyaux de plastique ABS de 3.8 cm (D.I.) et on les mit en place à 11 m au nord-est de la grille verticale formée par les blocs de verre (figure 2). À cet endroit, le niveau de la nappe phréatique se trouvait à 1.3 m sous la surface du sol. Les intervalles sélectionnés des piézomètres furent placés à des profondeurs variant de 1.8 à 5.7 m.

On releva les niveaux d'eau en août et en septembre 1978 ainsi qu'en février 1979. On préleva de l'eau des piézomètres en août 1978 à l'aide d'une pompe péristaltique portative. On mesura également par électrode l'E_H et le pH à l'aide d'une cuve à circulation d'eau en canalisation

étanche à l'air après avoir enlevé plusieurs volumes d'eau des piézomètres. On mesura aussi la conductivité et la température des eaux souterraines ainsi que la quantité d'oxygène dissous dans ces eaux lors du prélèvement.

On préleva sur le terrain des échantillons destinés à la mesure du carbone inorganique total au moyen de seringues jetables, puis on les analysa à l'aide du dispositif de mesure du carbone total d'Oceanography International. On évalua la teneur en chlore à l'aide d'une électrode à ions sélective et le degré d'alcalinité par titration acide. Le sulfate fut mesuré par turbidimétrie en le précipitant sous forme de $BaSO_4$

Pour le reste des analyses, on filtra en laboratoire les échantillons d'eau souterraine à travers des membranes de 0.45 μm sous une pression de N_2 (gaz). Les échantillons devant servir à la détection des cations majeurs furent acidifiés à l'aide de HCl concentré avant analyse par spectrophotométrie d'absorption atomique. On mesura les concentrations de quantités infinitésimales de cations (Sr, Ba, Rb, Cs) dans des échantillons non acidifiés par activation thermique des neutrons et par spectroscopie aux rayons gamma (Merritt, 1971).

Échantillons de sédiments et leurs caractéristiques

On préleva cinq carottes de sédiments couvrant la profondeur comprise entre 1.3 et 4.2 m, là où se trouvait le deuxième groupe de blocs de verre, selon la méthode décrite par Patterson et coll. (1978). Les carottes, placées dans des tubes de 5.08 cm de diamètre à fine paroi d'aluminium, reçurent une numérotation continue à la suite du préfixe «RA» (désignation du groupe de piézomètres des L.N.C.R. le plus proche).

La carotte RA1 fut découpée en sections de 30 cm et plus tard utilisée par Patterson et Spoel (1981) pour établir les valeurs de K_d^{Sr}. Après évacuation de l'eau par gravité, les autres carottes furent sectionnées dans le sens de la longueur à l'aide d'une lame de scie à dents carburées. Puis on recueillit des échantillons de sédiments à des intervalles choisis avant de les lyophiliser et de les préparer en vue du comptage.

On désigna chaque échantillon de sédiment en fonction de sa carotte d'origine et de la profondeur supérieure de l'intervalle retenu. Par exemple, l'échantillon RA5:353 provenait de l'intervalle de profondeur commençant à 353 cm au-dessous du sol dans la carotte RA5. On utilisa également un échantillon de sédiment provenant de l'analyse effectuée par les L.N.C.R. en 1971. Cet échantillon portait le nº 010:9 et provenait d'une profondeur comprise entre 272 et 276 cm, à 0.3 m en contrebas des blocs.

Les échantillons lyophylisés retenus pour l'analyse granulométrique furent passés au crible à secousse RO-Tap pendant 10 min. Puis, après avoir pesé les fractions tamisées, on nota les résultats sur du papier logarithmique afin d'obtenir des courbes cumulatives; on estima graphiquement les mesures des moments selon les méthodes mises au point par Folk et Ward (1957). Les lamines de limon et d'argile furent tamisées et l'on conserva la classe granulométrique inférieure à 0.0625 mm en vue de la préparation des échantillons pour le comptage.

On étudia la minéralogie des grains à l'aide d'un microscope binoculaire réfléchissant en s'intéressant à leurs caractéristiques physiques : clivage, fracture, couleur, éclat, etc. Dans la classe granulométrique comprise entre 0.42 et 0.50 mm, on préleva des échantillons de quartz, de feldspath, de biotite, de biotite-vermiculite, de muscovite et de hornblende au moyen de fines pinces de bijoutier ou d'une aiguille.

L'observation de lames minces et l'analyse par MEB-SDE (microscopie électronique à balayage-spectrométrie X à dispersion d'énergie) et par diffractométrie X permirent de déterminer d'autres caractéristiques des grains. Le MEB utilisé aux L.N.C.R. était un Cambridge Stereoscan couplé à un spectromètre Tracor Northern. Les échantillons soumis à la microscopie électronique n'avaient pas subi de traitement préalable, si ce n'est une lyophilisation et un enrobage au carbone. On eut recours à une échelle d'intensité énergétique logarithmique semi-quantitative pour distinguer les éléments plus lourds que le néon dans les quantités majeures, mineures et de l'ordre d'une trace. L'analyse par diffraction des rayons X fut effectuée à l'université Queen's à l'aide d'un diffractomètre Picker.

Préparation des échantillons pour le comptage

On prépara trois types de sédiments pour le comptage : des sédiments entiers, des fractions granulométriques et des fractions minérales séparées. Dans des flacons à échantillons bien secoués au préalable, on préleva directement à l'aide de spatules des échantillons de sédiments entiers correspondant aux intervalles stratigraphiques ainsi que des échantillons de limon et d'argile tamisés. Les matériaux ainsi prélevés furent répartis aussi uniformément que possible selon une épaisseur inférieure à 1 mm sur des disques de comptage en acier inoxydable de 3 cm de diamètre, pesés un par un au préalable. Les fractions granulométriques tamisées furent prélevées sur des fractions séparées mécaniquement à l'aide d'un dispositif de séparation des sédiments Soiltest. On répartit uniformément au centre des disques les grains des fractions minérales séparées. Après une seconde pesée, on fixa les échantillons sur les disques à l'aide de collodion flexible.

On calcula l'écart-type gaussien des pesées des échantillons et on l'utilisa par la suite pour déterminer les taux de comptage pondérés. Les sédiments sableux pesaient généralement de 40 à 100 mg, et les limons et les argiles pesaient de 20 à 35 mg. Quant aux fractions minérales séparées, leur poids variait généralement de 11 à 14 mg.

Comptage des échantillons et réglage des instruments

Les échantillons de sédiments furent comptés à l'aide d'un compteur Sharp proportionnel à faible courant bêta utilisant du gaz P-10 (90 % Ar et 10 % CH_4). Le compteur comprend deux détecteurs à fenêtres de 100 $\mu g/cm^2$; deux dispositifs de protection reliés entre eux constituent un écran anti-coïncidence. Aux L.N.C.R., le ^{41}Ar atmosphérique provenant du ^{40}Ar exposé au flux neutronique des réacteurs nucléaires de recherche constitue une source extérieure de rayonnement à faible intensité. Le comptage des échantillons de sédiments n'eut lieu que lorsqu'on jugeait les niveaux de ^{41}Ar atmosphérique non significatifs ou faibles d'après les indications d'un détecteur à scintillation NaI. En présence des faibles niveaux de ^{41}Ar, le détecteur débitait en permanence un courant de N_2 gazeux de façon à amoindrir l'effet exercé par ^{41}Ar sur les taux de comptage.

Le comptage durait d'ordinaire 2 à 4 h, jusqu'à ce qu'on ait recueilli au minimum 120 mesures. Ce laps de temps représente un compromis entre la nécessité d'obtenir des statistiques de comptage adéquates et uniformes, et donc de traiter autant d'échantillons que possible, et le désir de limiter l'incommodité propre au contrôle manuel des périodes de comptage.

Les résultats sont exprimés sous forme des taux de comptage suivants (comptages par minute, ou cpm) : brut, du mouvement propre du détecteur, corrigé et net. Pour déterminer le taux de comptage corrigé, il a suffi de soustraire le taux de comptage du mouvement propre du détecteur (déterminé à l'aide des disques de comptage à vide) du taux de comptage brut. On a alors rapporté l'ensemble des taux de comptage corrigés à un poids type de 100 mg en supposant que la qualité du comptage par détecteur des radionucléides terrestres naturels présents dans la matrice sédimentaire ne dependait pas du poids de l'échantillon. Il semble que cette hypothèse soit fondée dans le cas des faibles niveaux considérés (W.F. Merritt, communication personnelle). On calcula ensuite le taux de comptage net (cpm/100 mg) attribuable à la présence de ^{137}Cs et de ^{90}Sr en soustrayant le taux de comptage corrigé d'un échantillon de sédiment non contaminé, ou sédiment témoin. Les radionucléides terrestres naturels présents dans les sédiments, représentés par les taux de comptage corrigés des échantillons témoins, comprenaient ^{40}K, ^{87}Rb et les membres des familles radioactives ^{238}U et ^{232}Th.

Le comptage des échantillons retenus en présence ou en l'absence d'un absorbeur en aluminium recouvrant le disque à échantillon a permis de distinguer les contributions de ^{137}Cs et de ^{90}Sr aux taux de comptage nets. L'absorbeur, ou filtre, avait une épaisseur correspondant à 225 mg/cm^2, ce qui lui permettait d'arrêter toutes les particules bêta dont l'énergie était inférieure à 0.63 MeV (Friedlander et coll., 1964), et notamment les particules ^{90}Sr, ^{87}Rb et ^{137}Cs de 0.51 MeV. Les particules bêta provenant de la désintégration des produits de filtrage de ^{90}Sr, de ^{90}Y et, dans une moindre mesure, de ^{137}Cs (énergie maximale de 1.18 MeV), ainsi que de la désintégration de ^{40}K, de ^{41}Ar et des familles de radionucléides ^{238}U et ^{232}Th ont pu exercer une certaine influence sur le taux de comptage des échantillons filtrés, tout comme les particules gamma résultant de la désintégration de ^{137m}Ba, de ^{40}K, de ^{41}Ar et des familles radioactives de radionucléides ^{238}Y et ^{232}Th.

Des échantillons de sable fin non contaminé, ensemencés au moyen de radionucléides ^{137}Cs et ^{90}Sr ayant une activité connue (respectivement 53.7 ± 0.5 et 63.7 ± 0.6 Bq/g), ont servi à établir des normes d'étalonnage de ces deux éléments. On supposa que la qualité du comptage obtenu à l'aide des détecteurs de radiation dépendait du poids de l'échantillon et on prépara plusieurs fractions d'échantillons ensemencés et d'échantillons témoins dont le poids variait de 10 à 100 mg. Les taux de comptage nets des échantillons ensemencés, avec et sans filtration, ont alors permis d'obtenir des courbes d'étalonnage distinctes pour ^{137}Cs et ^{90}Sr. En l'absence de filtre, l'efficacité du comptage des deux radionucléides variait approximativement de 20 % à 30 %, selon le poids de l'échantillon, alors qu'en présence d'un filtre, elle tombait à 6 % pour ^{137}Cs et variait entre 0.2 % et 0.3 % pour ^{90}Sr.

Données statistiques (comptage) et calcul de la radioactivité

Les taux de comptage et de désintégration sont complétés par les écarts-types découlant des données statistiques sur le comptage et du caractère incertain du poids des échantillons. On établit l'écart-type du taux de comptage brut en calculant la racine carrée du nombre total de comptages divisée par le temps de comptage, en adoptant l'hypothèse d'une distribution de Poisson. Par contre, on évalua les écarts-types des taux de comptage du mouvement propre du détecteur à l'aide de l'écart-type gaussien moyen du fait de la présence occasionnelle de traces de ^{41}Ar atmosphérique.

Dans la plupart des cas, on enregistra de faibles taux de comptage et il fallut établir des niveaux critiques pour la détection (L_c) des taux nets et corrigés. Les valeurs approximatives des niveaux critiques de détection dérivaient des variances types des taux de comptage, décrites

par Lyon en 1981. On fixa à 0.10 la probabilité maximale acceptable de commettre une erreur de première catégorie (substance absente considérée comme présente).

L'impossibilité de normaliser les temps de comptage ne permit pas de calculer les limites de détection des taux de comptage de la manière rigoureuse définie par les radiochimistes (voir par exemple Currie, 1968). On mit donc au point une méthode fondée sur le calcul de la probabilité qu'un taux de comptage corrigé ou net (x), avec un écart-type (S_x), excédât le niveau critique de détection. Le calcul résultait de l'expression suivante :

$$Z = \frac{L_C - x}{S_x}$$

où Z est l'écart-type normal. La probabilité de détection correspondait alors à la distribution de la fréquence normale cumulative supérieure à Z, tirée de Snedecor et Cochran (1967).

Lorsqu'un échantillon de sédiment présente des taux de comptage nets filtrés et non filtrés statistiquement significatifs, il est possible de calculer l'activité de ^{137}Cs et de ^{90}Sr présents dans l'échantillon en solutionnant deux équations déduites de plusieurs relations communes. Les équations ont été décrites par Lyon (1981) et comprennent des termes liés à la qualité du comptage, au taux de comptage net filtré et non filtré des échantillons et au rapport entre taux net filtré et taux net non filtré des échantillons étalons. La concentration des deux radionucléides s'exprime en désintégrations par minute par 100 mg de sédiment sec (dpm/100 mg).

Le niveau approximatif de détection des deux radionucléides était de 10 dpm/100 mg (2 Bq/g), ce qui correspond à 5.2×10^{-13} g de ^{137}Cs par gramme de sédiment sec et 3.2×10^{-13}g de ^{90}Sr par gramme de sédiment sec.

L'unique obstacle majeur à l'évaluation des quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans les sédiments au moyen d'un compteur proportionnel à faible débit bêta consiste dans les très faibles taux de comptage obtenus lorsque l'absorbeur en aluminium est en place. Cela restreint la précision des taux obtenus ainsi que celle de la courbe d'étalonnage de ^{90}Sr avec filtration. Dans la plupart des cas, la probabilité que le taux de comptage filtré net ou corrigé dépassât le niveau critique de détection s'établissait à moins de 90 %. Par conséquent, en attribuant une valeur nulle à ces taux, on aurait risqué d'affecter les taux de comptage non filtrés d'un biais injustifié. Dans la présente étude, on décida que n'importe quel taux de comptage corrigé excédant son niveau critique de détection (probabilité de détection supérieure à 50 %) servirait au calcul du taux de comptage net. On considéra les taux de comptage n'obéissant pas à ce critère comme non détectés, en leur attribuant une valeur nulle. De la même manière, on ne tint pas compte des taux de comptage nets filtrés possédant une probabilité de détection supérieure à 0.5 lors du calcul ultérieur de l'activité de ^{137}Cs et de ^{90}Sr.

On supposa que les échantillons (à taux de comptage net filtré non détecté, mais à taux de comptage net non filtré détecté) contenaient uniquement du ^{137}Cs. Il est toutefois possible que ces échantillons aient contenu du ^{90}Sr; une méthode a d'ailleurs été mise au point pour exprimer cette possibilité (Lyon, 1981). La probabilité calculée d'une activité de ^{90}Sr supérieure à 0 dpm/100 mg était dans chaque cas inférieure à 0.5, comme l'indiquent les tableaux de données.

On analysa à l'aide d'un spectromètre gamma Ge (Li) deux échantillons entiers de sédiments (RA5:353 et RA5:373) d'un poids approximatif de 18 g, puis on les divisa mécaniquement avant de les analyser avec un compteur à faible émission bêta. Les niveaux de ^{137}Cs déterminés à l'aide de cet appareil sont supérieurs de 20 % à 55 % environ aux niveaux déterminés au moyen du spectromètre Ge (Li). Cette différence apparente peut résulter d'une erreur systématique des courbes d'étalonnage ou d'une distorsion minéralogique liée à la préparation des échantillons.

RÉSULTATS

Niveaux piézométriques et chimie

Sur le site, en août et en septembre 1978 et en février 1979, les gradients hydrauliques verticaux dans l'intervalle de profondeur de 1.8 à 5.7 m étaient variables, avec un maximum de 0.0106 entre les intervalles sélectionnés des trois piézomètres. Cela correspond à une vitesse verticale ascendante d'environ 6 cm/jour pour une porosité de 0.38 du sédiment (Lyon, 1981), soit seulement le tiers de la vitesse horizontale moyenne de l'eau souterraine sur le site.

Le tableau 1 contient les résultats analytiques des échantillons d'eau souterraine prélevés sur le terrain. La chimie de ces eaux est conforme à celle des eaux peu profondes dans l'ensemble du bassin du lac Perch.

L'eau prélevée à l'aide du piézomètre intermédiaire (RAb-2) avait une résistance ionique de 10^{-3} et les valeurs calculées des indices de solubilité indiquaient une sous-saturation en calcite, en strontianite et en célestite. Sur la base de cette sous-saturation et des analyses au MEB-SDE qui prouvent l'absence de dépôts minéraux sur les grains de sédiments, la précipitation des phases solides ne peut rendre compte de la rétention de ^{90}Sr ou des pertes de Cs.

Tableau 1. Analyse chimique des eaux souterraines réalisée au moyen de la série de piézomètres RAb

Paramètre*	Piézomètre			
	RAb-1	RAb-2		RAb-3
Intervalle d'échantillonnage (cm au-dessous de la surface)	180–220	330–370		530–570
Date d'échantillonnage	1978-08-01	1978-08-01	1978-08-24	1978-08-02
Température (°C)			8.6	8.0
Conductivité (µS/cm)	62	–	54	82
pH	5.4	–	5.5	6.4
E_H (V)	<0.3	0.44	0.55	0.27
H_2S (gaz)	Présent	Absent	Absent	Présent
Oxygène dissous†	0.2	1.2	–	0.1
Fe	0.3	0.1	<0.1	2.0
Mn	0.06	0.07	<0.05	0.06
Ca	6.5	5.5	7.5	12.5
Mg	1.6	1.8	2.2	3.6
Sr	3.5×10^{-2}	3.3×10^{-2}	3.7×10^{-2}	5.3×10^{-2}
Ba	1.6×10^{-2}	1.5×10^{-2}	1.8×10^{-2}	1.2×10^{-2}
Na	2.6	2.2	2.5	2.7
K	0.6	0.7	0.7	1.7
Rb	4.6×10^{-4}	1.8×10^{-3}	2.0×10^{-3}	1.4×10^{-3}
Cs	$<1 \times 10^{-6}$	5×10^{-6}	$<1 \times 10^{-6}$	$<1 \times 10^{-6}$
C.I.T.‡	11.0	11.3	11.5	12.6
Alcalinité (meq/L)	–	–	0.11	–
SO_4	–	–	18	–
Cl	7.8	5.6	–	21.6

* En milligramme par litre en l'absence d'unité précisée, à l'exception du pH.
† La mesure peut inclure l'oxygène dissous ayant diffusé à travers le tube de prélèvement Tygon.
‡ Carbone inorganique total.

Le fer dissous dans l'eau prélevée à l'aide du piézomètre intermédiaire a une concentration inférieure ou égale à 0.1 mg/L, ce qui reflète probablement l'influence limitative d'une phase solide d'oxyde de fer. L'analyse au MEB-SDE des sédiments du site n'a pas permis d'identifier de sulfure de fer authigène.

Stratigraphie et sédimentologie

Le sol du site appartient au sous-groupe du podzol orthique humo-ferrique (classification canadienne des sols) et l'horizon Bf atteint une profondeur maximale de 1.5 m.

Selon la terminologie de Reineck et Singh (1973), la stratification sédimentaire dans l'intervalle carotté de 1.3 à 4.2 m sous la surface est grossièrement interstratifiée. Elle consiste en ensembles straticulés de sable fin bien classé d'une épaisseur de 50 cm ou plus séparés par de minces lamines (1 mm) de limon et d'argile. La figure 5 illustre la stratigraphie observée dans la carotte RA5.

Certaines sections de carottes présentent des laminations du sable, régulières et très distinctes. Ces laminations, d'une épaisseur d'ordinaire inférieure à 1 cm, comportent des couches riches en éléments mafiques (biotite et hornblende) à grain fin et des couches riches en minéraux clairs à grain plus gros, ce qui évoque un milieu côtier. D'autres sections de carottes présentent des laminations du sable moins distinctes et plus épaisses (jusqu'à 5 cm), souvent délimitées par les variations de la teneur en limon. Cette stratification entrecroisée évoque l'action d'un faible courant migrant ou les rides provoquées par les vagues.

Les carottes RA3, RA4 et RA5 renfermaient une couche massive à grain moyen riche en feldspath, de 2 à 11 cm d'épaisseur. Il s'agissait de la seule couche contenant des galets.

Activité des échantillons de sédiments entiers

On procéda au comptage des échantillons de sédiments entiers provenant des carottes RA2, RA4 et RA5 afin de déterminer la distribution stratigraphique de la contamination par ^{137}Cs et par ^{90}Sr au voisinage des blocs. Les échantillons correspondant à l'intervalle de profondeur compris entre 330 et 360 cm de la carotte RA3, prélevés

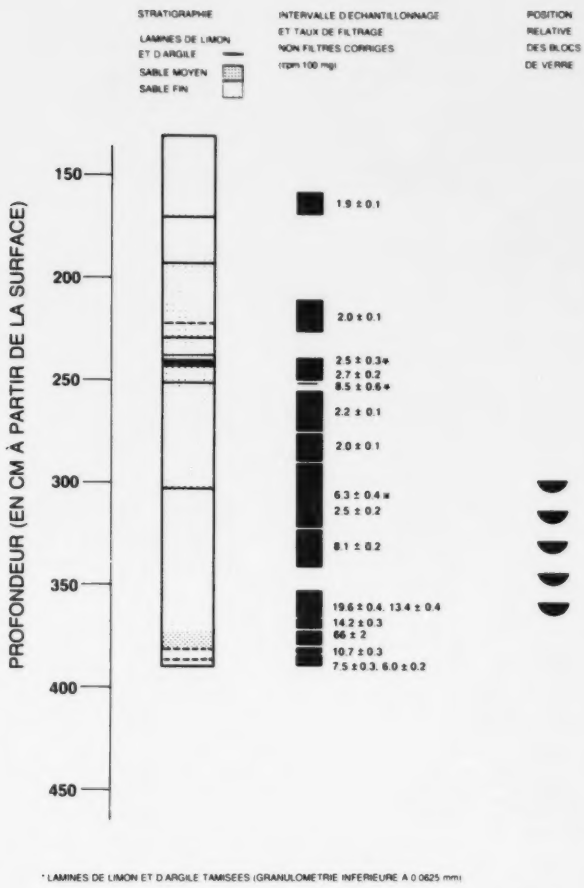


Figure 5. Stratigraphie des sédiments et distribution de la radioactivité dans la carotte RA5.

en contre-haut des blocs, ont servi à établir les taux de comptage du mouvement propre. Dans ce cas, le taux de comptage non filtré corrigé sur 2 h variait entre 1.3 ± 0.1 et 2.0 ± 0.2 cpm/100 mg. Ces taux n'étaient imputables qu'aux radionucléides terrestres naturels.

Les taux de comptage des sédiments provenant des autres carottes indiquent que, dans le cas de RA2, la contamination (26 cpm/100 mg) a été limitée à une lamine d'argile épaisse de 1 cm, située à 2.6 m de profondeur, alors que dans le cas de RA4, les lamines de limon situées dans l'intervalle de profondeur compris entre 3.2 et 4.1 m présentaient de faibles niveaux de contamination (jusqu'à 26 cpm/100 mg). C'est la carotte RA5 (figure 5), située à seulement 40 cm en contrebas des blocs, qui présentait les niveaux de contamination les plus élevés. On trouva des échantillons de sable contaminé à des profondeurs variant entre 2.9 m et la base de la carotte, l'échantillon le plus actif (66 cpm/100 mg) provenant de la couche de sable à minéraux clairs et grain moyen. Entre 2.5 et 3.0 m sous la surface, les lamines de limon présentaient des niveaux de contamination plus élevés que le sable fin adjacent. La carotte RA5 correspondant aux plus hauts niveaux de contamination, on s'attacha par la suite plus particulièrement aux sédiments qui en provenaient.

Adsorption de ^{137}Cs et de ^{90}Sr par les fractions minérales

On détermina la répartition de ^{137}Cs et de ^{90}Sr adsorbés d'après la minéralogie dans deux échantillons de sédiments contaminés : RA5:353 (profondeur de 353 à 367 cm) et RA5:373 (profondeur de 373 à 380 cm). On prépara des fractions séparées de quartz, de plusieurs feldspaths, de biotite, de biotite-vermiculite, de muscovite et de hornblende en vue du comptage de la fraction variant entre 0.42 et 0.50 mm de chaque échantillon de sédiment. On disposait de taux de comptage témoins variant de 0 (non décelés) à 7 cpm/100 mg après le comptage des radionucléides naturels des grains minéraux non contaminés tirés de la même fraction granulométrique de RA3:346. Ce furent le feldspath potassique, la muscovite et la biotite qui donnèrent les taux de comptage témoins non filtrés les plus élevés (supérieurs à 5 cpm/100 mg), ce qui traduisait probablement la présence de ^{40}K. Par altération en vermiculite, la biotite perd son potassium intercalaire, ce qui explique le faible taux de comptage non filtré de la biotite-vermiculite (2.6 cpm/100 mg).

Les taux de comptage et les quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr adsorbées par l'ensemble des fractions minérales séparées préparées apparaissent au tableau 2.

Quartz

Les grains de quartz furent identifiés au microscope réfléchissant d'après leur couleur, leur éclat vitreux et leur texture superficielle glaciaire. La plupart des grains étaient de forme anguleuse à subanguleuse et avaient un haut degré de sphéricité (Powers, 1953). Certains grains semblaient contenir des taches superficielles peu étendues, ou de l'ordre d'une trace, d'oxyde de fer rouge orange. Dans de rares cas, on put observer un plan de fracture recouvert d'oxyde de fer. L'analyse pétrographique d'une lame mince préparée à partir d'une fraction de grains de quartz révéla que la plupart des grains étaient monocristallins à extinction roulante. Les analyses diffractométriques montrèrent que les échantillons ne contenaient que des quantités minimes ou infimes de feldspath.

L'examen au microscope électronique à balayage montra que les grains de quartz présentaient une texture superficielle glaciaire bien développée, et notamment des cassures conchoïdales (Krinsley et Donahue, 1968; Krinsley

Tableau 2. Taux de comptage et contamination radioactive des grains minéraux séparés des échantillons RA5:353, RA5:373 et 010:9 (étude de 1971)

Numéro d'échantillon*	Type de comptage†	Type de comptage (comptages ÷ min)	Poids (mg)	Taux de comptage corrigé (cpm/100 mg)	Probabilité de détection‡	Taux de comptage net (cpm/100 mg)	Probabilité de détection‡	^{137}Cs (dpm/100 mg)§	^{90}Sr (dpm/100 mg)§
353-Q1	NF	750 ÷ 788	12.66	2.13 ± 0.35	1.00	N.D.	0.12	N.D.	N.D.
	F	99 ÷ 121	12.66	N.D.	0.00	N.D.	0.00		
373-Q1	NF	1118 ÷ 946	10.92	4.57 ± 0.41	1.00	2.79 ± 0.82	0.97	9.4 ± 2.7	N.D.
	F	167 ÷ 161	10.92	N.D.	0.49	N.D.	0.49	(P = 1.00)	(P = 0.33)
373-Q2	NF	168 ÷ 126	14.32	4.54 ± 0.74	1.00	2.76 ± 1.02	0.83	–	–
373-Q3	NF	230 ÷ 131	15.03	7.14 ± 0.77	1.00	5.36 ± 1.05	1.00	3 ± 12	15 ± 10
	F	148 ÷ 136	15.03	0.95 ± 0.61	0.70	0.95 ± 0.61	0.70	(P = 0.55)	(P = 0.83)
373-H1	NF	640 ÷ 139	13.54	29.0 ± 1.4	1.00	29.0 ± 1.4	1.00	99.9 ± 5.5	N.D.
	F	133 ÷ 145	13.54	N.D.	0.07	N.D.	0.00	(P = 1.00)	(P = 0.36)
353-F4 (rose translucide)	NF	365 ÷ 144	12.82	14.4 ± 1.1	1.00	9.40 ± 1.12	1.00	N.D.	29.7 ± 3.6
	F	149 ÷ 120	12.82	2.31 ± 0.81	0.97	2.31 ± 0.81	0.97	(P = 0.32)	(P = 1.00)
353-F6 (rose translucide)	NF	340 ÷ 156	11.75	12.7 ± 1.0	1.00	7.69 ± 1.10	1.00	26.0 ± 3.8	N.D.
	F	668 ÷ 647	11.75	N.D.	0.43	N.D.	0.43	(P = 1.00)	(P = 0.12)
353-K1 (orange opaque)	NF	662 ÷ 169	9.77	33.1 ± 1.6	1.00	27.8 ± 1.8	1.00	58.3 ± 9.1	32.3 ± 6.3
	F	1409 ÷ 1206	9.77	2.28 ± 0.38	1.00	2.28 ± 0.38	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
373-K1 (orange opaque)	NF	1258 ÷ 134	10.14	85.9 ± 2.8	1.00	80.6 ± 2.9	1.00	217 ± 20	48 ± 15
	F	219 ÷ 164	10.14	3.84 ± 0.91	1.00	3.84 ± 0.91	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
353-F2 (blanc translucide)	NF	268 ÷ 143	12.76	9.34 ± 0.93	1.00	7.51 ± 1.17	1.00	25.7 ± 4.1	N.D.
	F	1550 ÷ 1564	12.76	N.D.	0.06	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.47)
353-F5 (blanc translucide)	NF	214 ÷ 123	12.28	8.61 ± 1.00	1.00	6.78 ± 1.23	1.00	23.1 ± 4.2	N.D.
	F	127 ÷ 128	12.28	N.D.	0.30	N.D.	0.05	(P = 1.00)	(P = 0.47)

* Q – quartz; H – hornblende; F, P, K – feldspaths; B – biotite; V – biotite-vermiculite; M – muscovite.
† NF – non filtré; F – filtré.
‡ Probabilité que le taux de comptage dépasse le niveau critique de détection.
§ P – Probabilité que l'activité ne soit pas nulle.
N.D. – Non décelé.

Tableau 2 (suite)

Numéro d'échantillon	Type de comptage	Type de comptage (comptages ÷ min)	Poids (mg)	Taux de comptage corrigé (cpm/100 mg)	Probabilité de détection	Taux de comptage net (cpm/100 mg)	Probabilité de détection	^{137}Cs (dpm/100 mg)	^{90}Sr (dpm/100 mg)
353-F7 (blanc translucide)	NF	508 ÷ 145	12.90	21.9 ± 1.2	1.00	20.0 ± 1.4	1.00	68.8 ± 5.3	N.D.
	F	149 ÷ 159	12.90	N.D.	0.10	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.41)
373-P1 (blanc translucide)	NF	627 ÷ 150	12.88	27.2 ± 1.3	1.00	25.3 ± 1.5	1.00	86.9 ± 5.7	N.D.
	F	133 ÷ 140	12.8[illegible]	N.D.	0.14	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.39)
373-F3 (blanc translucide)	NF	564 ÷ 166	13.13	20.7 ± 1.1	1.00	18.9 ± 1.3	1.00	64.7 ± 4.9	N.D.
	F	636 ÷ 652	13.13	N.D.	0.07	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.42)
010:9-F1 (blanc translucide)	NF	226 ÷ 158	12.08	6.19 ± 0.82	1.00	4.37 ± 1.09	1.00	14.8 ± 3.7	N.D.
	F	123 ÷ 127	12.08	N.D.	0.21	N.D.	0.03	(P = 1.00)	(P = 0.48)
353-F3 (blanc opaque)	NF	693 ÷ 184	12.14	25.4 ± 1.2	1.00	23.6 ± 1.4	1.00	80.1 ± 5.3	N.D.
	F	857 ÷ 794	12.14	1.10 ± 0.34	0.83	N.D.	0.09	(P = 1.00)	(P = 0.40)
373-P2 (blanc opaque)	NF	1917 ÷ 151	18.38	65.4 ± 1.6	1.00	63.5 ± 1.8	1.00	215 ± 19	14 ± 15
	F	233 ÷ 160	18.38	2.44 ± 0.52	1.00	1.58 ± 0.90	0.61	(P = 1.00)	(P = 0.83)
353-B1	NF	2046 ÷ 127	13.40	115.1 ± 2.9	1.00	107.8 ± 2.9	1.00	354 ± 19	16 ± 12
	F	169 ÷ 136	13.40	2.21 ± 0.73	0.98	2.21 ± 0.73	0.98	(P = 1.00)	(P = 0.91)
373-B1	NF	5271 ÷ 85	15.76	389.1 ± 6.2	1.00	381.9 ± 6.2	1.00	1291 ± 42	51 ± 14
	F	331 ÷ 157	15.76	7.36 ± 0.75	1.00	7.36 ± 0.75	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
353-V1	NF	6215 ÷ 173	11.56	304.9 ± 5.1	1.00	302.3 ± 5.1	1.00	799 ± 40	208 ± 26
	F	392 ÷ 131	11.56	17.7 ± 1.3	1.00	16.0 ± 1.6	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
373-V1	NF	5228 ÷ 45	17.64	655 ± 10	1.00	652 ± 10	1.00	2266 ± 72	72 ± 23
	F	455 ÷ 138	17.64	13.33 ÷ 0.89	1.00	11.7 ± 1.2	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
373-M1	NF	1917 ÷ 151	7.00	51.6 ± 2.7	1.00	44.8 ± 2.8	1.00	144.4 ± 9.8	N.D.
	F	233 ÷ 160	7.00	2.8 ± 1.3	0.87	N.D.	0.30	(P = 1.00)	(P = 0.31)

et Doornkamp, 1973). Aucun des grains examinés ne présentait de signes nets de dissolution chimique ou de précipitation. En général, de nombreuses particules adhéraient aux grains de quartz, et l'analyse spectrale de l'intensité aux rayons X révéla que la plupart de ces particules, de composition variable, s'apparentaient à la farine glaciaire. On détecta également sur les grains une substance à forte teneur en fer (probablement l'oxyde de fer).

Le tableau 2 indique les taux de comptage et les niveaux de contamination radioactive des quatre fractions de quartz. Les taux de comptage nets non filtrés leur correspondant sont les plus bas de tous les taux des fractions minérales préparées, à la seule exception de l'une des fractions de feldspath. L'échantillon 373-Q3 qui correspond au taux de comptage net non filtré le plus élevé (5.4 cpm/100 mg) est le seul à contenir probablement du ^{90}Sr (15 ± 10 dpm/100 mg). Les surfaces de tous les grains de cette fraction présentaient des traces ou de petites taches rouge orange probablement dues à la présence d'oxyde de fer.

Hornblende

Les grains de hornblende furent triés en fonction de leur clivage caractéristique (leur clivage s'effectue selon des angles de 56° et 124°), de leur éclat vitreux et de leur couleur noire. La plupart des grains de hornblende observés au microscope réfléchissant présentaient des traces de limon brun et d'argile. La hornblende représentait moins de 1 % de l'ensemble de la fraction granulométrique examinée.

On ne prépara qu'une seule fraction séparée de hornblende contaminée, contenant approximativement 100 dpm de ^{137}Cs/100 mg (tableau 2). Evans (1954) avait déjà indiqué que les fractions de hornblende provenant des sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch avaient fixé du Cs. On n'a pas encore expliqué le mécanisme de rétention, mais on peut l'apparenter à une dissolution incongruente des minéraux.

Feldspath

Le feldspath se distingue surtout grâce à son clivage, à son éclat pouvant aller du vitreux au nacré, à sa couleur et à sa cassure irrégulière à conchoïdale. Les grains retenus étaient translucides à opaques, subanguleux à subarrondis, et présentaient une sphéricité élevée (Powers, 1953). Dans la plupart des cas, on sépara les grains en deux groupes principaux en fonction de leur couleur : rose et orange; blanc. Les sédiments contenaient des feldspaths ressemblant au quartz, mais il fut impossible de les trier de façon sûre à l'aide du microscope réfléchissant. Environ 20 % des grains de feldspath sélectionnés présentaient des traces superficielles d'oxyde de fer ou de limon-argile.

Feldspaths roses et orange

Les grains de feldspath du groupe rose et orange renfermaient tous de petites inclusions d'hématite rouge brillante, toujours visibles en lame mince. L'ensemble des grains de feldspath rose et orange formaient moins de 10 % de l'ensemble des feldspaths sélectionnés. Environ 50 % des grains opaques roses et orange étaient des fragments de roche contenant des minéraux mafiques en quantité minime ou infime.

L'examen de lames minces de l'échantillon 353-F4 (tableau 2) montra que les grains roses translucides étaient généralement constitués de microcline. Un quart des grains présentaient une macle polysynthétique à la manière du plagioclase (surtout de l'oligoclase avec un peu d'albite). L'examen des lames minces montra également que les grains opaques avaient subi une altération importante. Il s'avéra difficile d'identifier les grains altérés : on put cependant identifier parmi eux quelques grains de plagioclase sodique.

Le degré de translucidité ou d'opacité des grains de feldspath rose et orange était lié à la présence de séricite et de produits d'altération allant du blanc au brun orange à grain très fin qui ne purent être identifiés avec certitude. Le degré de séricitisation était proportionnel au degré de développement des autres produits d'altération. Dans les échantillons modérément altérés, les produits d'altération très fins se localisaient principalement le long des plans de clivage et des microfractures. Il semble que la matière brun orange soit due à la présence de minuscules inclusions d'hématite en exsolution ou de produits d'altération de l'hématite.

Feldspaths blancs

L'expression «feldspath blanc» s'applique aux grains dont la translucidité va de l'opaque au presque transparent et à l'incolore. Comme pour les feldspaths roses et orange, le degré de translucidité ou d'opacité dépendait de la présence en plus ou moins grande quantité de séricite et de produits d'altération à grain très fin non identifiés. Dans l'ensemble, moins de 10 % des grains de feldspath étaient blancs opaques.

L'analyse des lames minces de feldspaths blancs montra qu'il s'agissait surtout d'oligoclase, tandis que l'étude du signe et de l'angle de l'axe optique semblait dénoter une composition d'environ An_{20}. On décela la présence de microcline dans toutes les lames minces (quoiqu'en moindre abondance dans les échantillons les plus altérés) ainsi que

d'albite. Les produits d'altération masquaient la plupart des propriétés optiques des grains opaques. Le plagioclase n'était pas zoné et l'on put déceler la présence d'un peu d'antiperthite. Dans chaque lame mince, quelques grains contenaient des inclusions d'hématite, mais aucun des grains ne présentait la coloration caractéristique des feldspaths roses et orange. On trouva de l'épidote dans certains grains, ce qui est un signe de saussuritisation.

Les données d'observation disponibles démontrent que les produits d'altération présents dans toutes les lames de feldspaths examinés sont dus à des processus métamorphiques ou hydrothermiques et non à une altération récente. Parmi les données recueillies, on a inclus la présence de saussurite et de séricite, ainsi que l'absence de limites bien définies entre les feldspaths altérés et les feldspaths non altérés. Il semble que la présence de limites bien définies caractérise les processus d'altération par les agents atmosphériques (Rodgers et Holland, 1979; Walker et coll., 1978).

Analyse MEB-SDE des feldspaths

L'analyse MEB-SDE des surfaces des grains de feldspath orange et rose fit apparaître d'importantes variations de la composition élémentaire, dénotant la présence d'albite, de perthite et de microcline. Sur un ensemble de cinq grains de feldspath blanc examinés de la même façon, quatre grains semblaient contenir plus de Ca que de Na et de K. Cette observation ne concorde pas avec les résultats de l'analyse des lames minces des fractions de feldspath blanc et l'on ne sait si la prédominance apparente de Ca à la surface des minéraux provient de la géométrie de la source de rayons X ou d'une véritable altération chimique. Les spectres de la matrice des feldspaths ne permirent pas d'identifier les produits d'altération; on nota cependant que toutes les surfaces des grains renfermaient du Fe.

Plusieurs des grains de feldspath extraits des échantillons de la carotte RA3 et d'autres carottes de sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch furent observés au MEB-SDE, mais on remarqua qu'un seul d'entre eux présentait une surface nettement dépolie. Aucune des surfaces des grains de feldspath provenant de la carotte RA3 ne semblait avoir été sensiblement adoucie par un revêtement dû à la précipitation.

La surface de tous les feldspaths examinés au MEB était parsemée de particules; c'est la surface de l'échantillon 010:9-F1 qui en comportait le plus, soit environ 5 % de la surface totale. Les spectres de la matrice des grains interféraient avec ceux des particules, de sorte qu'il était difficile de déterminer la composition de ces dernières. L'ampleur des variations de la composition semble indiquer que la plupart des particules sont de la farine glaciaire. Cependant, de nombreuses particules avaient une composition similaire à celle de la matrice à laquelle elles adhéraient, ce qui évoque la possibilité d'une fragmentation de surface.

Niveaux de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans les feldspaths

Les niveaux de ^{137}Cs et de ^{90}Sr adsorbés par les fractions de feldspath rose et orange allaient de l'indétectable à 217 ± 20 dpm/100 mg et 48 ± 15 dpm/100 mg respectivement (tableau 2). La présence d'un plus grand pourcentage de grains rouge orange dans l'échantillon 373-K1 (30 % contre 10 % dans l'échantillon 353-K1) constituait la seule différence apparente entre les échantillons orange opaques provenant des deux intervalles de carotte. Alors qu'il semble que l'on ait décelé la présence du radioisotope ^{90}Sr dans une seule fraction de feldspath blanc (373-P2), les huit fractions de ce minéral contenaient du ^{137}Cs (23 ± 4 à 215 ± 19 dpm/100 mg).

Il se peut que la présence de ^{90}Sr dans les feldspaths roses et orange soit due à la minéralogie granulaire primaire ou, plus probablement, à la présence d'oxydes. Les grains des fractions roses translucides étaient constitués principalement de microcline et, en quantités moindres, de plagioclase, tandis que les fractions blanches sans quantité détectable de ^{90}Sr étaient surtout constituées de plagioclase et, accessoirement, de microcline. Le fait que les échantillons colorés contenaient une plus grande quantité d'hématite ou présentaient un plus haut degré d'altération de ce minéral permet de croire que la sorption fut principalement due à la présence d'oxydes de fer.

Quelle que soit leur couleur, les fractions de feldspath opaque fortement altéré contenaient plus de ^{137}Cs adsorbé que les fractions translucides (tableau 2). On ne peut évaluer l'influence des produits d'altération à grain très fin non identifiés sur la sorption de ^{137}Cs, mais ils ont pu jouer un rôle considérable pour peu qu'ils aient contenu de la séricite et de la zéolite. On pourrait s'attendre à ce que la séricite, à cause de sa structure, retienne des quantités infinitésimales de ^{137}Cs en tant que cation intercalaire. Certaines zéolites ont une forte capacité d'adsorption du Cs et leur grande sélectivité fait qu'elles fixent cet élément plus volontiers que le Sr (Berak, 1963). Le plagioclase, quelle que soit son origine, contient généralement un peu de séricite (Moorehouse, 1959) et est donc susceptible de retenir et d'adsorber un peu de Cs dans la plupart des sédiments.

C'est Evans (1954) qui fut le premier à observer la rétention du Cs dans les grains de feldspath de la partie inférieure du bassin du lac Perch; il signala que les solutions de H_2O_2, de $CaCl_2$ ou de Na_2CO_3 ne désorbaient pas facilement des quantités notables de ^{134}Cs et de ^{137}Cs.

Micas

On tria les grains de biotite en fonction de leur couleur noire et de leur forme plate caractéristique. La plupart des surfaces des grains avaient un aspect terne, alors que les plans récemment clivés (001) avaient un éclat vitreux. L'éclat terne est certainement dû à l'altération chimique de la surface des grains. On tria la biotite-vermiculite (la présence de vermiculite fut confirmée par la diffraction des rayons X) en se basant sur la couleur de l'altération superficielle. La surface des grains de biotite-vermiculite allait du vert foncé au bronze; quelques grains présentaient même un assortiment de toutes les couleurs.

Les grains de muscovite extraits des sédiments du site d'enfouissement des blocs de verre étaient transparents ou translucides, en fonction de la présence d'inclusions minuscules ou de produits d'altération. L'échantillon de sédiment RA5:353 ne contenait pas assez de muscovite dans la classe granulométrique comprise entre 0.42 et 0.50 mm pour permettre la préparation d'une fraction séparée de ce minéral.

À l'exception de l'échantillon 373-V1, seuls quelques grains dans l'ensemble des fractions de mica contenaient des taches visibles d'oxyde de fer. L'échantillon 373-V1 présentait un revêtement d'oxyde de fer sur 5 % environ de sa surface totale.

À la différence de presque toutes les autres fractions de minéraux préparées pour le comptage, on nota une différence entre les grains de biotite et les grains de biotite-vermiculite provenant des deux intervalles d'échantillonnage de RA5. Les grains provenant de RA5:373 étaient plus altérés, ce qui se traduisait en effet par une plus grande proportion de biotite vert foncé et par une coloration bronze plus prononcée de la biotite-vermiculite. Notons aussi que, dans cet échantillon, les grains de biotite et de biotite-vermiculite étaient présents en proportions à peu près égales, alors que dans l'échantillon RA5:353, celle-ci était beaucoup moins abondante que celle-là. Il semble que l'altération plus marquée de l'échantillon RA5:373 ait résulté d'un phénomène de triage des sédiments primaires. Patterson (1979) a constaté que l'altération active de la biotite par les agents atmosphériques dans la partie inférieure du bassin du lac Perch se limitait apparemment aux deux premiers mètres de la section. De plus, les grains fins de biotite présents dans les deux intervalles de la carotte RA5 n'étaient pas plus altérés que les gros grains, ce qui se serait sans doute produit en cas d'altération climatique active.

Analyse MEB-SDE des micas

Les spectres de rayons X de la surface des grains de biotite et de biotite-vermiculite indiquèrent que, sous l'effet de l'altération, cette surface s'était appauvrie en Cl et en K tout en s'enrichissant en Ca, Mg, Fe, Ti et Cr, ce qui concorde avec la transformation de la biotite en vermiculite. À quelques exceptions près, les spectres de rayons X des particules se trouvant à la surface des grains de biotite et de biotite-vermiculite étaient très semblables aux spectres de la matrice correspondante. Les microphotographies ont indiqué que ces particules provenaient de la surface des grains soumis à un processus physique de fragmentation et que les grains avaient commencé à s'ouvrir le long des plans de clivage. Ces béances, de même que la présence de particules issues de la surface des minéraux, ont permis d'augmenter la surface active et la capacité d'adsorption des grains de biotite et de biotite-vermiculite au delà de ce que l'on pourrait attendre en ne tenant compte que de la forme des grains.

Les grains de muscovite ne comportaient pas de revêtement superficiel visible d'oxyde de Fe, mais les spectres de la matrice démontrèrent la présence de petites quantités de Fe. Sous un grossissement de x 5000, les arêtes des grains de muscovite semblent partiellement ouvertes, sans que ce phénomène soit aussi prononcé que pour la biotite et la biotite-vermiculite.

Niveaux de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans les micas

Les niveaux de ^{137}Cs adsorbé par la biotite-vermiculite sont à peu près le double des niveaux de ^{137}Cs adsorbé par la biotite dans chacun des intervalles stratigraphiques (tableau 2). Dans le cas de l'échantillon de sédiment RA5:373, la fraction de biotite avait adsorbé, en poids, plus de ^{137}Cs (1291 dpm/100 mg) que la fraction de muscovite (144 dpm/100 mg). Cette donnée concorde avec les observations selon lesquelles l'altération de la biotite, y compris l'ouverture des arêtes des grains, a été plus prononcée que celle de la muscovite. Sawhney (1970) a montré que les propriétés de sorption des phyllosilicates 2:1 dépendent pour une grande part de la superficie des arêtes des minéraux «effilochés» (feuillets intercalaires à bords dilatés formant des «zones de sorption en biseau»). L'analyse de l'échantillon 373-V1 qui contenait les grains les plus visiblement altérés et possédait la plus haute teneur en ^{137}Cs (2266 ± 72 dpm/100 mg) a encore confirmé l'importance de l'altération.

La biotite et la muscovite peuvent s'altérer en vermiculite en perdant le K intercalaire, remplacé par de l'hydroxyde de Al. Bien qu'il soit généralement admis que l'altération des gros grains de mica touche d'abord les arêtes

et gagne ensuite le centre des grains, Jackson et coll., (1973) ont observé que la diffusion cationique et le dépôt d'oxydes de Fe et de Al le long des plans de clivage sont facilités par la présence de pores et de microfractures de surface. Les feuillets intercalaires dilatés de la vermiculite se prêtent bien au dépôt des cations alcalino-terreux hydratés comme le Sr.

Les grains de biotite-vermiculite provenant de l'endroit où se trouvent les blocs de verre semblent avoir une plus grande capacité de rétention de ^{90}Sr que les grains de biotite (tableau 2). Ce n'est que dans le cas des fractions extraites de l'échantillon de sédiment RA5:353 que l'on peut établir une corrélation significative entre le degré d'altération de la biotite en vermiculite et la quantité de ^{90}Sr adsorbé (16 ± 12 dpm/100 mg pour la biotite comparé à 208 ± 26 dpm/100 mg pour la biotite-vermiculite). Il se peut que certaines des différences entre les fractions de biotite et les fractions de biotite-vermiculite soient dues à la présence d'oxydes; toutefois, la fraction 373-V1 qui contenait les grains les plus altérés et les plus riches en fer n'avait pas beaucoup fixé de ^{90}Sr. Ces remarques portent à croire que d'autres mécanismes de rétention ont pu jouer un rôle important dans le cas des micas. En fait, il est possible que la sorption irrégulière des feuillets intercalaires de ^{137}Cs ait provoqué l'effondrement irrégulier de ces feuillets. Cette sorption a pu aussi isoler les zones contenant des feuillets intercalaires ayant des cations alcalino-terreux comme le Sr. Douglas (1977) a décrit ce mécanisme d'isolement.

Activité des fractions de sédiments tamisés

L'échantillon RA5:353, après tamisage en plusieurs fractions granulométriques «Phi», fut divisé mécaniquement et compté. On tamisa aussi un intervalle stratigraphiquement équivalent de la carotte RA3 (346 à 367 cm) de façon à obtenir des fractions de granulométrie correspondante pour mesurer les taux de comptage témoins. Le tableau 3 donne les taux de comptage nets et les niveaux de ^{137}Cs et ^{90}Sr des fractions tamisées de l'échantillon RA5:353.

Bien que la fraction de limon et d'argile et la fraction de sable grossier et très grossier (granulométrie supérieure à 0.5 mm) aient constitué chacune moins de 0.3 % en poids de l'échantillon RA5:353, leurs taux de comptage pondérés étaient trois fois supérieurs à ceux des fractions de granulométrie intermédiaire. Cette observation concorde avec les résultats concernant les fractions minéralogiques et avec les autres études portant sur les sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch (Jackson et Inch, 1980; Patterson et Spoel, 1981); elle peut s'expliquer par la plus grande abondance de minéraux micacés dans la fraction la plus grossière comme dans la fraction la plus fine et par la surface spécifique plus importante des grains de cette dernière. L'examen microscopique des fractions granulométriques des sédiments voisins des blocs de verre dénote une répartition similaire des minéraux micacés. La plus grande abondance de grains de biotite dans les fractions plus fines explique probablement le taux de comptage

Tableau 3. Contamination radioactive du sédiment entier et des fractions tamisées de l'échantillon RA5:353

Granulométrie (mm)	Type de comptage *	Taux de comptage net (cpm/100 mg)	Probabilité de détection †	^{137}Cs ‡ (dpm/100 mg)	^{90}Sr ‡ (dpm/100 mg)	Poids de l'échantillon (%)	Comptage net pondéré (cpm/[% poids] × [100 mg])
Sédiment entier	NF	11.83 ± 0.37	1.00	52.7 ± 3.1	2.1 ± 1.7	100	11.83 ± 0.37
	F	0.25 ± 0.10	0.84	(P = 1.00)	(P = 0.88)		
>0.5	NF	35.95 ± 0.66	1.00	137.6 ± 5.4	23.2 ± 2.6	0.261	0.09 ± 0.00
	F	1.67 ± 0.14	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)		
0.25-0.5	NF	14.40 ± 0.41	1.00	–	–	26.972	3.88 ± 0.11
	F						
0.125-0.25	NF	10.56 ± 0.18	1.00	46.1 ± 3.2	2.7 ± 2.2	63.115	6.66 ± 0.11
	F	0.26 ± 0.12	0.84	(P = 1.00)	(P = 0.88)		
0.0625-0.125	NF	13.50 ± 0.36	1.00	–	–	9.383	1.27 ± 0.03
<0.0625	NF	32.33 ± 0.76	1.00	147.2 ± 7.8	1.6 ± 4.6	0.268	0.09 ± 0.00
	F	0.46 ± 0.26	0.70	(P = 1.00)	(P = 0.64)		
Ensemble des fractions tamisées						99.999	11.99 ± 0.16

* NF – non filtré; F – filtré.
† Probabilité que le taux de comptage net dépasse le niveau critique de détection.
‡ P – Probabilité d'activité non nulle.

témoin plus élevé (4.3 cpm/100 mg) de la fraction limon et argile de RA3:346.

On trouve des niveaux relativement élevés de ^{137}Cs à la fois dans les fractions les plus grossières et dans les fractions les plus fines. Toutefois, on ne trouve de ^{90}Sr enrichi que dans la fraction grossière. La raison de l'absence de niveaux relativement élevés de ^{90}Sr dans la fraction fine n'est pas claire car, à la détection, les échantillons tamisés des lamines de limon et d'argile (granulométrie inférieure à 0.0625 mm) extraits de la carotte RA5 contenaient d'ordinaire nettement plus de ^{90}Sr que de ^{137}Cs. Selon certains auteurs (Jackson et Inch, 1980; Catto, 1978), les couches de limon et d'argile du bassin du lac Perch contiennent parfois plus de mica-vermiculite et de chlorite interstratifiés que la fraction limon et argile des sédiments sablonneux. Cette différence minéralogique n'explique toutefois pas entièrement la répartition de la contamination par ^{90}Sr selon la granulométrie.

DISCUSSION

Répartition du ^{137}Cs retenu

Pour chacun des deux échantillons de sédiments RA5:353 et RA5:373, on peut classer pondéralement la série complète des fractions minérales en fonction de la quantité mesurée de ^{137}Cs adsorbé (tableau 2) comme suit :

biotite-vermiculite >
biotite ≥
feldspath opaque ou altéré >
muscovite >
hornblende ≧
feldspath translucide ≧
quartz.

C'est la première fois qu'on détermine l'ordre d'adsorption du ^{137}Cs par les principaux minéraux des sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch; il concorde avec le classement partiel des grains traités chimiquement (H_2O_2, $CaCl_2$ et $NaCO_3$), proposé par Evans (1954) : feldspath≥ hornblende ≥ quartz (peut-être contaminé par du feldspath).

La biotite et la biotite-vermiculite ne sont que des constituants relativement mineurs des sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch, mais elles jouent un rôle disproportionné en ce qui concerne la sorption de ^{137}Cs. Comme l'ont observé Jackson et Inch (1980), la présence de biotite et de biotite-vermiculite explique en grande partie les variations observées de la contamination par ^{137}Cs, exprimée en poids, selon les unités stratigraphiques, les échantillons de sédiments et les fractions granulométriques. Cela ne signifie cependant pas que la majeure partie du ^{137}Cs contenue dans le sédiment entier soit nécessairement associée à la biotite et à la biotite-vermiculite. Jackson et Inch (1980) estiment que la majeure partie du ^{137}Cs est adsorbée par le feldspath, particulièrement abondant. Cette hypothèse semble raisonnable, mais ne s'applique pas à la classe granulométrique comprise entre 0.42 et 0.50 mm. Dans cette fraction, le feldspath translucide (qui est pondéralement l'avant-dernier agent d'adsorption du ^{137}Cs et qui est moins séricitique que le feldspath opaque) représente 80 % de l'ensemble des feldspaths.

La majeure partie du ^{137}Cs libéré des blocs de verre a été retenue par les sédiments situés à proximité de ces blocs; elle n'a pas été adsorbée électrostatiquement et se prête mal aux échanges avec d'autres cations. Dix-neuf ans après l'enfouissement des blocs, 90 % de la quantité totale de ^{137}Cs libérée n'avait pas parcouru plus de 0.3 m (Walton et Merritt, 1979). En outre, d'autres chercheurs (Evans, 1954; Jackson et Inch, 1980) ont présenté des résultats expérimentaux selon lesquels les sédiments contaminés de la partie inférieure du bassin du lac Perch seraient dans l'incapacité de désorber des quantités notables de ^{137}Cs.

Répartition du ^{90}Sr retenu

La rétention du ^{90}Sr par les sédiments à proximité des blocs de verre a été beaucoup moins nette que celle du ^{137}Cs. Onze ans après l'enfouissement des blocs, il était impossible de définir clairement un panache d'eau souterraine contaminée à cause de l'advection et de la dispersion du ^{90}Sr hors du site (W.F. Merritt, données inédites). Neuf seulement des vingt fractions minérales de la présente étude contenaient des quantités détectables de ^{90}Sr; le niveau mesuré le plus élevé était inférieur d'un ordre de grandeur au plus haut niveau de ^{137}Cs (tableau 2). Néanmoins, on peut classer pondéralement les fractions minérales en fonction de la quantité de ^{90}Sr retenu comme suit :

biotite-vermiculite ≧
biotite et feldspath contenant de l'hématite >
tous les autres minéraux (quartz, feldspath blanc, hornblende et muscovite).

Comme pour les adsorbants du ^{137}Cs, il s'agit là du premier ordre d'adsorption du ^{90}Sr déterminé pour l'ensemble des minéraux les plus abondants des sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch.

Caractéristiques des grains minéraux

On ne peut pas classer les adsorbants du ^{90}Sr en autant de catégories que ceux du ^{137}Cs. L'analyse des

données incite à croire que cette différence tient au fait que la sorption du ^{90}Sr dépend davantage des caractéristiques sédimentaires moins spécifiquement minérales. Ainsi, la rétention de ^{90}Sr semble être liée à la présence ou à l'absence de revêtements d'oxyde de Fe et peut-être de Mn et de Al qui peuvent se trouver sur n'importe quel minéral. Par exemple, la fraction quartzeuse de la carotte RA5 qui contenait du ^{90}Sr mesurable comportait aussi une quantité infinitésimale visible d'oxyde de Fe sur les grains. De la même façon, les feldspaths porteurs de ^{90}Sr étaient colorés par l'hématite ou contenaient des grains très fins d'hématite ou de ses produits d'altération. La corrélation apparente entre le ^{90}Sr retenu et les oxydes métalliques a été confirmée récemment par les résultats de recherches en laboratoire sur les sédiments contaminés de la partie inférieure du bassin du lac Perch (Jackson et Inch, 1983). Les données prouvent qu'il existe une forte corrélation entre la quantité de ^{90}Sr et les quantités de Fe, de Mn et de Al que l'on peut extraire à l'aide d'hydrochlorure hydroxylamine 0.1 *M* acidifié. Les revêtements d'oxyde de fer observés au microscope réfléchissant ne se prêtaient pas à l'analyse au MEB-SDE.

Les microfractures et les revêtements de farine glaciaire sont deux autres caractéristiques communes à plus d'une phase minérale et susceptibles de favoriser la rétention. Les microfractures des grains causeraient ainsi la sorption hors équilibre de quantités infinitésimales de solutés par suite de processus de diffusion contrôlée. Krinsley et Hyde (1971) ont observé que les grains de quartz issus des environnements glaciaires sont caractérisés par un grand nombre de fissures (de 0.1 μm à 0.25 μm de large) que l'on peut observer au microscope électronique à balayage, en mode d'émission cathodoluminescente. Les grains du bassin du lac Perch ont certainement été fracturés durant leur transport glaciaire. Pourtant, comme certaines des fractions de quartz et de feldspath présentaient des niveaux indétectables de ^{137}Cs ou de ^{90}Sr, il semble que les microfractures ne sont pas courantes ou si elles le sont, qu'elles ne donnent pas lieu à une rétention notable.

L'analyse au MEB-SDE a montré que la plupart des particules adhérant aux grains de quartz, de feldspath et de hornblende étaient sans doute des composants de la farine glaciaire. On suppose que les particules adhérentes n'ont pas exercé d'effet notable sur les taux de comptage, car la fraction de feldspath (010:9-F1) qui en contenait le plus grand nombre correspond au taux de comptage le plus faible de toutes les fractions feldspathiques. Notons aussi, comme dans le cas des microfissures, que l'activité indétectable de certaines fractions semble indiquer que ce facteur n'est pas important.

Rétention du ^{90}Sr

Des expériences en laboratoire ont montré, que la majeure partie, mais non la totalité, du ^{90}Sr adsorbé par les sédiments contaminés de la partie inférieure du bassin du lac Perch se prêtait bien à la désorption (Ophel et coll., 1972; Ophel, 1973; Jackson et Inch, 1980; Pickens et coll., 1981; Killey, 1982). En outre, les différences entre la répartition prévue et la répartition observée du ^{90}Sr adsorbé sur le site d'enfouissement des blocs de verre en 1963 prouvent qu'il s'est produit une certaine sorption hors équilibre (Walton et Merritt, 1979; Melnyk et coll., 1984).

Les calculs tenant compte des données recueillies dans la présente étude permettent de croire que le ^{90}Sr qui demeure encore à proximité des blocs de verre représente une petite proportion du ^{90}Sr adsorbé à l'origine qui se prêtait mal aux échanges avec d'autres cations. On peut comparer les niveaux mesurés de ^{90}Sr retenu avec les niveaux prévus de ^{90}Sr adsorbé calculés à partir des valeurs de K_d^{Sr} établies par Patterson et Spoel (1981) et des concentrations historiques de ^{90}Sr dans l'eau souterraine du site d'enfouissement. On peut formuler le rapport entre ces variables de la façon suivante :

$$(XSr) = K_d^{Sr} (Sr) \qquad (1)$$

(XSr) étant la quantité de Sr adsorbé par gramme de minéral adsorbant et (Sr) la concentration en équilibre par millilitre de solution.

Patterson et Spoel (1981) ont eu recours à une technique d'essai par portions en laboratoire afin de déterminer les valeurs de K_d^{Sr} pour diverses fractions minérales du sédiment non contaminé de la carotte RA1. Des fractions pesant entre 63 et 98 mg furent triées manuellement et dosées pendant 48 h avec de l'eau provenant du piézomètre RAb-2, ensemencée avec une quantité infinitésimale de ^{85}Sr. Le tableau 4 résume les valeurs mesurées de K_d^{Sr} pour différentes fractions de minéraux. Le tableau 5 donne les quantités de ^{90}Sr adsorbé calculées à l'aide de l'équation 1,

Tableau 4. Valeur mesurée de K_d^{Sr} pour diverses fractions minérales de l'échantillon RA1:330.

Fraction minérale	K_d^{Sr}* (mL/g)
Quartz avec un peu de feldspath	0.4
Feldspaths mélangés (surtout blancs)	4.7
Biotite	3.7
Biotite altérée en vermiculite	37
Muscovite	2.6

*Patterson et Spoel (1981).

Tableau 5. Comparaison des quantités mesurées et des quantités calculées de ^{90}Sr adsorbé par les fractions minérales

Fraction minérale	Quantité mesurée dpm/100 mg)*	Quantité calculée en se basant sur une concentration de 290 dpm/mL† de l'eau souterraine (dpm/100 mg)	Quantité calculée en se basant sur une concentration de 5.3×10^{-1} dpm/mL‡ de l'eau souterraine (dpm/100 mg)
Quartz	N.D.	12	0.02
Quartz avec traces d'oxyde de Fe	15 ± 10	–	–
Feldspaths mélangés (surtout blancs)	–	140	0.25
Feldspath rose translucide et orange opaque	N.D.; 29.7 ± 3.6 32 ± 6; 48 ± 15	–	–
Feldspath blanc translucide et opaque	N.D.; 14 ± 15	–	–
Biotite	16 ± 12; 51 ± 14	110	0.20
Biotite-vermiculite	208 ± 26. 72 ± 23	1100	2.0
Muscovite	N.D.	75	0.14

* N.D. – Non décelé. On a relevé une seule mesure pour chaque valeur notée sauf pour le quartz (N.D. – 2 mesures) et le feldspath blanc translucide et opaque (N.D. – 6 mesures).
† Concentration moyenne de l'eau souterraine en 1960.
‡ Concentration moyenne de l'eau souterraine en 1977.

les valeurs K_d^{Sr} reportées (tableau 4) et les concentrations de l'eau souterraine de ^{90}Sr pour les valeurs de 290 dpm/mL (1.3×10^{-1} μCi/L) et de 5.3×10^{-1} dpm/mL (2.4×10^{-4} μCi/L). La valeur élevée de la concentration correspond à la concentration moyenne en ^{90}Sr de l'eau souterraine prélevée en 1960 dans un piézomètre situé à 1.8 m en contrebas des blocs (Merritt, 1976). La valeur faible représente la concentration moyenne en ^{90}Sr de l'eau prélevée en 1977 (Walton et Merritt, 1979). Elle est représentative des concentrations annuelles moyennes en ^{90}Sr depuis 1966. Le tableau 5 donne aussi les quantités mesurées de ^{90}Sr adsorbé qui ont été déterminées au cours de la présente étude (tableau 2).

On ne peut évidemment faire des comparaisons précises entre les quantités mesurées de ^{90}Sr adsorbé par les fractions de la carotte RA5 et les quantités calculées à partir de l'équation 1, des valeurs de K_d^{Sr} et des concentrations en ^{90}Sr. Les sédiments provenant de la carotte RA5 (situés à 0.4 m en contrebas des blocs de verre) ont probablement été exposés à de plus hauts niveaux de ^{90}Sr que ceux qui avaient été mesurés dans le carottier en 1960 (à 1.8 m en contrebas). Notons aussi que Patterson et Spoel (1981) n'avaient pas indiqué la granulométrie des fractions destinées aux essais par portions. Un examen visuel des grains de ces fractions au moment de leur préparation permit de constater qu'ils étaient en moyenne plus petits que les grains provenant de la carotte RA5, de sorte qu'on aurait pu s'attendre à ce qu'ils aient adsorbé une plus grande quantité pondérée de ^{90}Sr.

Les quantités mesurées de ^{90}Sr dans les fractions minérales sont très inférieures aux quantités prédites à l'aide des résultats de K_d^{Sr} et de la concentration de l'eau souterraine en 290 dpm/mL de ^{90}Sr observée en 1960 (comparer les colonnes 2 et 3 du tableau 5). Comme la valeur de la concentration de l'eau souterraine est probablement une estimation prudente du niveau maximal d'exposition auquel ont été soumis les sédiments, les données permettent de croire que, dans le cas de la biotite et de la biotite-vermiculite, moins de 20 % du ^{90}Sr vraisemblablement adsorbé peu après l'enfouissement et le lessivage des blocs est encore retenu.

En comparaison des résultats fondés sur la concentration moyenne en ^{90}Sr de 1960, les quantités mesurées de ^{90}Sr retenu sont beaucoup plus élevées que celles qui ont été calculées en se basant sur la concentration de l'eau souterraine en ^{90}Sr en 1977, soit 5.3×10^{-1} dpm/mL (comparer les colonnes 2 et 4 du tableau 5). L'importance de ces différences permet de conclure que le ^{90}Sr encore fixé sur le quartz (avec des traces d'oxyde de Fe), sur le

feldspath rose et orange, sur la biotite et sur la biotite-vermiculite est très fortement adsorbé et ne se prête pas bien aux échanges, d'autant plus que les sédiments ont été exposés aux eaux souterraines diluées pendant plus de 10 ans.

Les résultats de la présente étude concordent avec les observations des autres chercheurs selon lesquelles les sédiments des L.N.C.R. comprennent plusieurs sites, qui dépendent du niveau de réversibilité et sont propices à la sorption du ^{90}Sr. Alors que tout le ^{90}Sr adsorbé au cours d'expériences par portions de trois jours se prête bien aux échanges (Killey, 1982), 20 % à 50 % seulement du ^{90}Sr adsorbé pendant des périodes de contact d'environ 20 à 25 ans peut être éliminé par un traitement de désorption à l'aide d'une solution de $CaCl_2$ ou de $SrCl_2$ (Jackson et Inch, 1983 et 1980; Killey, 1982). Killey, dans une communication personnelle, a également noté que la désorption lente hors équilibre de ^{90}Sr donne des valeurs apparentes de K_d^{Sr} plus élevées dans les parties anciennes du panache de contamination. Les travaux de ces chercheurs indiquent que la majeure partie du ^{90}Sr retenu par les sédiments est associée à des oxydes de Fe, de Mn et de Al. De plus, les résultats de la modélisation des données pédologiques recueillies sur le site d'enfouissement des blocs de verre en 1963 s'améliorent lorsqu'on fait intervenir un double mécanisme de sorption (Melnyk et coll., 1984).

CONCLUSIONS

L'étude aboutit aux conclusions suivantes :

1. Le radionucléide ^{137}Cs, fortement retenu par les sédiments, ne se prête pas bien aux échanges avec d'autres cations. Les phases minérales importantes qui retiennent le césium sont les phyllosilicates, principalement la biotite-vermiculite et la biotite. Les feldspaths qui contiennent des produits d'altération tels que la séricite exercent également une rétention notable.

2. Comparé au ^{137}Cs le ^{90}Sr est beaucoup moins bien retenu et sa répartition dans les sédiments est moins tributaire de la nature des minéraux. Les minéraux les plus adsorbants sont la biotite-vermiculite et la biotite. Les résultats de cette étude et d'autres études indiquent que les sédiments présentent une gamme de sites de sorption du ^{90}Sr allant du facilement réversible au très lentement réversible. Le ^{90}Sr retenu est associé pour une grande part à des oxydes, et notamment à des oxydes de Fe.

REMERCIEMENTS

Nous tenons à remercier le Programme de soutien à la recherche sur les ressources en eau d'Environnement Canada et Énergie atomique du Canada Limitée pour leur contribution financière au présent travail. Nous exprimons notre gratitude particulière à R.E. Jackson, de l'Institut national de recherches en hydrologie, d'Environnement Canada, et aux membres du Secteur de la recherche environnementale, Laboratoires nucléaires de Chalk River, Énergie atomique du Canada Limitée, notamment à W.F. Merritt (en retraite).

RÉFÉRENCES

Berak, L. 1963. The sorption of microstrontium and microcesium on the silicate minerals and rocks. Nuclear Research Institute of the Czechoslovak Academy of Science, UJV-528-63, Prague, Tchécoslovaquie, 38 p.

Catto, N.R. 1978. The Late Quaternary Geology of the Chalk River Region, Ontario and Quebec. Mémoire de B.Sc., Université Queen's, Kingston (Ont.), 321 p.

Catto, N.R., R.J. Patterson et W.A. Gorman. 1982. The Late Quaternary Geology of the Chalk River region, Ontario and Quebec. Can. J. Earth Sci. 19: 1218-1231.

Champ, D.R. et W.F. Merritt. 1981. Particulate transport of cesium in groundwater. Exposé présenté à la Deuxième réunion annuelle de la Canadian Nuclear Society, Ottawa, Canada, juin 1981. Énergie atomique du Canada Limitée, AECL-7440, 4 p.

Cherry, J.A., R.E. Jackson, D.C. McNaughton, J.F. Pickens et H. Woldetensae. 1975. Physical hydrogeology of the lower Perch Lake Basin. Dans Hydrological Studies on a Small Basin on the Canadian Shield, préparé par P.J. Barry, Énergie atomique du Canada Limitée, AECL-5041/I, Chalk River (Ont.), p. 625-680.

Currie, L.A. 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination – application to radiochemistry. Anal. Chem. 40: 586-593.

Deer, W.A., R.A. Howie et J. Zussman. 1966. *An Introduction to the Rock-Forming Minerals*. Longman Group Ltd., Londres, Angleterre, 528 p.

Douglas, L.A. 1977. Vermiculites. Dans Minerals in Soil Environments. Préparé par J.B. Dixon et S.B. Weed, Soil Sci. Soc. Am., Madison, WI, p. 259-292.

Evans, E.J. 1954. Properties of disposal area soil. Travail inédit. Énergie atomique du Canada Ltée, Chalk River (Ont.).

Folk, R.L. et W.C. Ward. 1957. Brazos River bar, a study in the significance of grain-size parameters. J. Sediment. Petrol. 27: 3-27.

Francis, C.W. et F.S. Brinkley. 1976. Preferential adsorption of ^{137}Cs to micaceous minerals in contaminated freshwater sediment. Nature, 260: 511-513.

Friedlander, G., J.W. Kennedy et J.M. Miller. 1964. *Nuclear and Radiochemistry*. John Wiley and Sons Ltd., New York, N.Y., 585 p.

Jackson, M.L., S.Y. Lee, J.L. Brown, I.B. Sachs et J.K. Syers. 1973. Scanning electron microscopy of hydrous metal oxide crusts intercalated in naturally weathered micaceous vermiculite. Soil Sci. Soc. Am., Proc. 37: 127-131.

Jackson, R.E. et K.J. Inch. 1980. Hydrogeochemical processes affecting the migration of radionuclides in a fluvial sand aquifer at the Chalk River Nuclear Laboratories. Rapport nº 7 de l'INRH, Ottawa (Ont.), 58 p.

Jackson, R.E. et K.J. Inch. 1983. Partitioning of ^{90}Sr among aqueous and mineral, species in a contaminated aquifer. Environ. Sci. Technol. 17(4): 231-237.

Killey, R.W.D. 1982. Groundwater transport of reactive contaminants near the CRNL waste management area: some realities. Dans International Conference on Radioactive Waste Management, Winnipeg (Man.), Can. Nucl. Society, p. 502-509.

Kinniburgh, D.G., J.K. Syers et M.L. Jackson. 1975. Specific adsorption of trace amounts of calcium and strontium by hydrous oxides of iron and aluminum. Soil Sci. Soc. Am. Proc. 39: 464-470.

Krinsley, D.H. et J. Donahue. 1968. Environmental interpretation of sand grain surface textures by electron microscopy. Geol. Soc. Am. Bull. 79: 743-748.

Krinsley, D.H. et P.W. Hyde. 1971. Cathodoluminescence studies of sediments. Scanning Electron Microsc. 1971, Partie 1, p. 409-416.

Krinsley, D.H. et J.C. Doornkamp. 1973. *Atlas of Quartz Sand Textures*. Cambridge University Press, Cambridge, Angleterre, 91 p.

Lyon, K.E. 1981. Retention of ^{137}Cs and ^{90}Sr by mineral sorbents in a shallow sand aquifer. Thèse de M.Sc., Université Queen's, Kingston (Ont.), Canada, 262 p.

Melnyk, T.W., F.B. Walton et L.H. Johnson. 1984. High-level waste glass burial test: leaching and migration of fission products. Dans Nuclear and Chemical Waste Management, vol. 5, Pergamon Press Ltd., p. 49-62.

Merritt, W.F. 1971. Identification and measurement of trace elements in fresh water by neutron activation. Dans Proc. of the international symposium on identification and measurement of environmental pollutants, Conseil national de recherches du Canada, Ottawa (Ont.), p. 358-362.

Merritt, W.F. 1976. The leaching of radioactivity from highly radioactive glass blocks buried below the water table: Fifteen years of results. Énergie atomique du Canada Limitée, AECL-5317, Chalk River (Ont.), 10 p.

Merritt, W.F. et P.J. Parsons. 1964. The safe burial of high-level fission product solutions incorporated into glass. Health Phys. 10: 655-664.

Moorehouse, W.W. 1959. *The Study of Rocks in Thin Section*. Harper & Row, Publishers, New York, N.Y., 514 p.

Murray, J.W. 1975. The interaction of metal ions at the manganese dioxide – solution interface. Geochim. Cosmochim. Acta, 39: 505-519.

Ophel, I.L. 1973. The environmental capacity of freshwaters for waste radionuclides. Dans Environmental Behaviour of Radionuclides Released in the Nuclear Industry, IAEA-SM-172/45, Vienne, Autriche, p. 613-624 (Énergie atomique du Canada Limitée, AECL-4742, Chalk River, Ont.).

Ophel, I.L., C.D. Fraser et J.M. Judd. 1972. Strontium concentration factors in biota and bottom sediments of a freshwater lake. Dans Radioecology Applied to the Protection of Man and His Environment, Commission of the European Communities, EUR-4800, Luxembourg, p. 509-530.

Patterson, R.J. 1979. Progress report for the project "Geochemical controls on the mobility of radionuclides in the shallow groundwater flow system, Chalk River, Ont." Département des sciences géologiques, Université Queen's, Kingston (Ont.), 27 p.

Patterson, R.J. et T. Spoel. 1981. Laboratory measurements of the strontium distribution coefficient K_d^{Sr} for sediments from a shallow sand aquifer. Water Resour. Res. 17(3): 513-520.

Patterson, R.J., S.K. Frape, L.S. Dykes et R.A. McLeod. 1978. A Coring and squeezing technique for the detailed study of subsurface water chemistry. Can. J. Earth Sci. 15: 162-169.

Pickens, J.F., W.F. Merritt et J.A. Cherry. 1980. Field determination of the physical transport parameters in a sandy aquifer. Dans The Use of Nuclear Techniques in Water Pollution Studies, IAEA, Vienne, Autriche, p. 239-265.

Pickens, J.F., R.E. Jackson, K.J. Inch et W.F. Merritt. 1981. Measurement of distribution coefficients using a radial-injection dual-tracer test. Water Resour. Res. 17(3): 529-544.

Powers, M.C. 1953. A new roundness scale for sedimentary particles. J. Sed. Pet. 23: 117-119.

Reineck, H.E. et I.B. Singh. 1973. *Depositional Sedimentary Environments*. Springer-Verlag, New York, N.Y., 439 p.

Rodgers, G.P. et H.D. Holland. 1979. Weathering products within microcracks in feldspars. Geology, 7: 278-280.

Sawhney, B.L. 1970. Potassium and cesium ion selectivity in relation to clay mineral structure. Clays Clay Miner. 18: 47-52.

Snedecor, G.W. et W.G. Cochran. 1967. *Statistical Methods*. Iowa State University Press, Ames, IA, 594 p.

Tamura, T. 1964. Reactions of cesium-137 and strontium-90 with soil minerals and sesquioxides. Eighth International Congress of Soil Chemistry, 3: 465-478.

Tamura, T. 1965. Selective sorption reactions of strontium with soil minerals. Nucl. Saf. 7: 99-103.

Tamura, T. et E.G. Struxness. 1963. Reactions affecting strontium removal from radioactive wastes. Health Phys. 9: 667-704.

Walker, T.R., B. Waugh et A.J. Crone. 1978. Diagenesis in first-cycle desert alluvium of Cenozoic age, southwestern United States and northwestern Mexico. Geol. Soc. Am. Bull. 89: 19-32.

Walton, F.B. et W.F. Merritt. 1979. Long-term extrapolation of laboratory glass leaching data for the production of fission product release under actual groundwater conditions. Dans Scientific Basis for Nuclear Waste Management, vol. 2. Préparé par G.J. McCarthy, Plenum Press, New York, N.Y., p. 155-166.

Wang, H.F. et M.P. Anderson. 1982. *Introduction to Groundwater Modeling, Finite Difference and Finite Element Methods*. W.M. Freeman and Company, San Francisco (Californie).